



# Colloidal lubrication of DLC contacts: from steady state to transient state: Application to the piston - rings - cylinder contact

André Ernesto

## ► To cite this version:

André Ernesto. Colloidal lubrication of DLC contacts: from steady state to transient state: Application to the piston - rings - cylinder contact. Autre. Ecole Centrale de Lyon, 2014. Français. NNT: 2014ECDL0035 . tel-01170984

**HAL Id: tel-01170984**

**<https://theses.hal.science/tel-01170984>**

Submitted on 2 Jul 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Thèse de l'Université de Lyon

délivrée par l'École Centrale de Lyon

pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR**

Spécialité : **Mécanique** de l'École Doctorale **MEGA**

Soutenue publiquement le 28 Novembre 2014 à Lyon

par

**André ERNESTO**

---

## **LUBRIFICATION COLLOÏDALE DE CONTACTS DLC :** **DU RÉGIME STATIONNAIRE AU RÉGIME TRANSITOIRE** *Application à la zone Segments-Piston-Chemise*

---

Préparée au **Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes (LTDS)**

Composition du jury :

Jean-Louis MANSOT	Professeur	Rapporteur
Pierre MONTMITONNET	Directeur de Recherche CNRS	Rapporteur
Didier LEONARD	Professeur	Président du jury
Yves GACHON	Docteur	Examineur
Guy MONTEIL	Professeur	Examineur
Juliette CAYER-BARRIOZ	Chargée de Recherche CNRS, HDR	Directrice de thèse
Denis MAZUYER	Professeur	Directeur de thèse



*À mes parents*

*À mes frères*

*Et tous les autres*



## Avant propos

Les travaux présentés dans ce mémoire sont le fruit d'une étroite collaboration entre le Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes de l'École Centrale de Lyon, UMR CNRS 5513, et la société IREIS. Aussi, je tiens à exprimer ma gratitude envers toutes celles et ceux qui, d'une façon ou d'une autre, ont contribué à rendre cette expérience professionnelle mémorable tout au long de ces trois années de thèse.

Toute ma reconnaissance s'adresse en particulier à mes deux directeurs de thèse, Denis Mazuyer et Juliette Cayer-Barrioz, pour m'avoir ouvert le monde de la recherche en général et de la tribologie en particulier. Merci pour votre travail d'encadrement remarquable, votre compétence scientifique et votre encouragement perpétuel qui ont été des facteurs déterminants dans la réussite de ce projet. Vous m'avez apporté ce que j'étais venu chercher en thèse : découvrir le monde de la recherche des passionnés. Cette thèse n'aurait jamais été ce qu'elle est sans vous.

Denis, je tiens à te remercier pour la confiance que tu m'as accordée, ainsi que pour toute l'intelligence, la rigueur et l'intuition que tu as apportées à ce travail. Chacune de nos discussions m'a permis d'avancer d'un pas et de comprendre toujours un peu mieux la tribologie. J'ai découvert grâce à toi, la rigueur de raisonnement et la richesse résultant de la confrontation d'idées. Tes fonctions de directeur du LTDS n'ont jamais été des obstacles à un travail efficace, passionnant et enrichissant. Travailler avec toi a été un grand plaisir et une expérience particulièrement enrichissante. Tu as su ôter beaucoup de mes doutes grâce à ton optimisme sans égal.

Juliette, je tiens à te remercier pour m'avoir accompagné pendant ces années de travail tout en me laissant évoluer tel un électron libre. Merci pour les nombreux débats scientifiques, pour tes conseils avisés et tes critiques constructives qui sont des éléments majeurs du bon déroulement de cette thèse. Nos réunions de travail ont toujours été très animées, les discussions passionnées et l'ambiance très bonne. Tu donnes l'envie et tu pousses les gens à se dépasser pour finalement donner le meilleur d'eux-mêmes. En cela tu es remarquable et je te remercie. Je ressens au fond de moi une immense joie et une véritable chance d'avoir eu l'un des meilleurs encadrements qui puisse être pour mener à bien ce dur travail qu'est la thèse. Merci pour ta disponibilité exemplaire, ta gentillesse et ta bonne humeur. Je ne te remercierai jamais assez pour ton soutien sans faille lors la rédaction et la forme de ce document qui doit également beaucoup à tes nombreuses relectures.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'un contrat CIFRE avec la société IREIS et je ne saurais trop remercier Philippe Maurin-Perrier pour la confiance qu'il a bien voulu m'accorder en acceptant de financer cette thèse. Comment ne pas remercier Louis Mourier sans qui elle n'aurait tout simplement pas vu le jour. Tu m'as fait entrevoir le monde de la recherche et tu m'en as transmis le goût par ton enthousiasme. Je tiens à t'exprimer ma plus profonde sympathie. J'associe pleinement à ce travail Yves Gachon,

Christophe Héau, Smaïl Aaziz et Frédéric Faverjon pour leurs conseils ingénieux, leur appui dans la réalisation des essais ; mais aussi pour m'avoir fait bénéficier de leurs larges compétences scientifiques, de leur expérience et pour leur totale implication dans ce travail. Merci également à toutes les personnes d'IREIS qui m'ont aidé pendant la thèse.

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés dans le cadre d'un projet ANR établi entre PSA, TOTAL, IREIS, le LTDS et le LSA. Je tiens à remercier les personnes représentant ces institutions et qui ont participé à la réalisation de ces travaux notamment au cours des réunions d'avancement. Ces réunions ont été très enrichissantes tant au niveau scientifique qu'au niveau humain. Merci tout particulièrement à Benoît Thiebaut pour les mesures DLS réalisées au CReS-Total.

Mes remerciements vont également à ceux qui ont accepté de consacrer de l'énergie, et une partie de leur temps, à l'examen minutieux de ce mémoire et pour la pertinence de leurs critiques. Je remercie Pierre Montmitonnet et Jean-Louis Mansot qui m'a fait l'honneur de traverser l'Atlantique à cette occasion, pour avoir accepté le rôle souvent ingrat de rapporteur, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et pour leurs commentaires pertinents sur ce manuscrit. Je remercie également mon très cher ami, Didier Léonard, pour l'intérêt constant pour ce travail et qui m'a fait l'honneur de présider mon jury. Je tiens aussi à souligner le travail des examinateurs lors de ma soutenance et remercie Yves Gachon et Guy Monteil de se joindre à eux pour la lecture de ce manuscrit. À tous, je voudrais dire combien j'ai apprécié votre présence en ce jour qui fut l'aboutissement d'un long cheminement.

Mes remerciements vont ensuite à l'ensemble du personnel du LTDS, technique, administratif et scientifique, pour m'avoir accueilli et supporté aussi sympathiquement pendant ces trois années. Merci également à toutes les personnes avec qui j'ai pu échanger lors de réunions, de congrès, de débats, de colloques ou tout simplement de cafés scientifiques. Les occasions n'ont pas manqué. Merci à Suzanne Moro pour ta gentillesse, ta serviabilité et surtout ton efficacité, Didier Roux pour ta bonne humeur quotidienne, Mathieu Guibert pour ton expérience, Serge Zara pour ta grande dévotion, Nasario Morgado pour ton extrême gentillesse, Mickael Sylvestre pour ton soutien informatique et tous ceux que j'ai pu involontairement oublier.

Sans malheureusement pouvoir les citer tous, je souhaiterais remercier l'ensemble des doctorants, post-doctorants et autres stagiaires du laboratoire qui, par leur enthousiasme et leur dynamisme, donnent une vraie âme à ce laboratoire, ce qui m'a donné envie d'y travailler et de m'y investir.

J'associe à la richesse de ces trois années mes collègues thésards Stéphanie Eymard, Olga Gorbatchev, Cyrielle Forest et plus récemment Alexia Crespo, qui en cohabitant dans mon bureau ont partagé les hauts et les bas de ces trois années. Merci de m'avoir associé à d'innombrables conversations, scientifiques ou non, et pour tous ces bons moments de travail et de bonne humeur que nous avons passés ensemble. Franchement, comme on était bien dans ce bureau !

Je tiens également à remercier mes amis les plus proches avec lesquels j'ai passé le plus de temps durant cette thèse : Florian Bremond à l'esprit vif, Mohamadou Bocar Diew et son éternelle bonne humeur, Marine Cioccolini pour sa complicité sans faille, Fabien Dalzin et ses jeux de mots. Sincèrement, merci à vous.

À tous ceux enfin dont je ne citerai pas le nom car ils sont nombreux mais qui se reconnaîtront, en particulier le 11 du LTDS Futsal Club, qu'ils trouvent ici l'expression de mes remerciements les plus sincères pour la bonne humeur qu'ils ont su créer au cours de ces trois années.

Je ne saurais terminer ces remerciements sans adresser mes derniers mots à ma famille. D'abord à mes parents pour tous les sacrifices consentis pour que j'arrive jusqu'ici. Ensuite à mes deux frères, Emmanuel et Daniel, pour tout ce qu'ils ont fait pour moi et pour leur soutien inconditionnel. Merci également à Franciele et Claudia qui m'ont soutenu, encouragé et surtout supporté pendant cette période pas toujours facile. Merci enfin, et surtout, à ma mère pour son soutien de tous les instants. Je te dois une partie de ce que je suis devenu aujourd'hui et j'en suis fier. Merci de m'avoir toujours épaulé, merci pour tout.





# Table des matières

<b>Avant propos.....</b>	<b>5</b>
<b>Liste des symboles .....</b>	<b>13</b>
<b>Introduction générale .....</b>	<b>17</b>
<b>1. Lubrification des moteurs Diesel en présence de suies .....</b>	<b>22</b>
1.1. Introduction .....	23
1.2. Lubrifiant moteur : un produit multifonctions .....	23
1.2.1. Composition des lubrifiants .....	23
1.2.2. Propriétés rhéologiques des lubrifiants .....	26
1.2.3. Vieillessement des lubrifiants .....	33
1.3. Le lubrifiant vieilli : un système colloïdal complexe .....	35
1.3.1. Les lubrifiants moteur en tant que suspensions colloïdales .....	35
1.3.2. Les forces interparticulaires dans les milieux dispersés .....	37
1.3.3. Stabilité statique des suspensions colloïdales .....	39
1.3.4. Diffusion de particules colloïdales dans un fluide visqueux : impact sur la rhéologie.....	39
1.4. Mécanismes de lubrification en présence de suies .....	40
1.4.1. Régimes de lubrification .....	40
1.4.2. Influence de la présence des suies .....	43
1.5. Conclusions .....	46
<b>2. Les revêtements DLC.....</b>	<b>48</b>
2.1. Introduction .....	49
2.2. Composition et microstructure des dépôts carbone .....	49
2.2.1. Un élément chimique fondamental : le carbone .....	49
2.2.2. Cristallographie du carbone.....	51
2.2.3. Propriétés des couches minces de DLC.....	53
2.3. Les procédés de dépôt DLC .....	55
2.3.1. Méthodes physiques (PVD : Physical Vapor Deposition) .....	56
2.3.2. Méthodes chimiques (CVD : Chemical Vapor Deposition) .....	58
2.3.3. Mécanismes de croissance des couches minces.....	61
2.3.4. Adhérence des dépôts DLC .....	65
2.3.5. Élaboration d'un multicouche à base de carbone .....	65
2.4. Caractérisation des dépôts DLC réalisés .....	68
2.4.1. Mesure de l'épaisseur .....	68
2.4.2. Mesure des propriétés optiques.....	69
2.4.3. Mesure de l'adhérence .....	70
2.4.4. Mesure de la dureté et du module d'élasticité.....	71
2.4.5. Mesure de la topographie de surface .....	72
2.4.6. Récapitulatif des caractéristiques des dépôts réalisés .....	74
2.5. Conclusions .....	75

<b>3.</b>	<b>Comportement tribologique du film interfacial en régime stationnaire .....</b>	<b>76</b>
3.1.	<i>Introduction .....</i>	77
3.2.	<i>Description du dispositif expérimental .....</i>	77
3.2.1.	Démarche scientifique .....	77
3.2.2.	Simulation expérimentale de la zone SPC.....	78
3.2.3.	Conditions tribologiques et protocole expérimental .....	79
3.2.4.	Description des lubrifiants .....	80
3.3.	<i>Mécanismes de formation du film lubrifiant .....</i>	83
3.3.1.	Procédure expérimentale .....	83
3.3.2.	Effet de la rhéologie du lubrifiant .....	84
3.3.3.	Effet de la nature de la surface .....	88
3.4.	<i>Comportement tribologique du lubrifiant.....</i>	89
3.4.1.	Procédure expérimentale .....	89
3.4.2.	Réponse en frottement.....	91
3.4.3.	Frottement en film complet et rhéologie sous pression .....	93
3.4.4.	Frottement en régime limite et effet de surface .....	97
3.5.	<i>Conclusions .....</i>	99
<b>4.</b>	<b>Comportement tribologique du film interfacial en glissement pur.....</b>	<b>101</b>
4.1.	<i>Introduction .....</i>	102
4.2.	<i>Approche scientifique et cinématique du contact .....</i>	102
4.3.	<i>Description du phénomène d'agrégation sous glissement pur.....</i>	103
4.3.1.	Observations <i>in situ</i> et processus d'agrégation .....	103
4.3.2.	Distribution des épaisseurs au sein du contact .....	105
4.3.3.	Cinématique des agrégats.....	107
4.3.4.	Affinité de l'agrégat aux surfaces.....	108
4.4.	<i>Loi de frottement en glissement pur.....</i>	109
4.5.	<i>Influence de la vitesse en glissement pur.....</i>	112
4.5.1.	Cinétique d'agrégation .....	112
4.5.2.	Comportement des agrégats soumis à la force centrifuge .....	113
4.5.3.	Vitesse moyenne des agrégats et temps de résidence .....	114
4.5.4.	Loi de frottement .....	116
4.6.	<i>Conclusions .....</i>	116

<b>5. Comportement tribologique du film interfacial en régime transitoire et effet de surface .....</b>	<b>118</b>
5.1. <i>Introduction .....</i>	119
5.2. <i>Description des phénomènes transitoires.....</i>	119
5.3. <i>Modélisation des phénomènes transitoires : couplage épaisseur-contrainte .....</i>	121
5.3.1. Du roulement pur au glissement pur : $t_0 - t_1$ .....	122
5.3.2. Le glissement pur : de $t_1$ à $t_3$ .....	124
5.3.3. Remplissage progressif du contact : $t_3 - t_5$ .....	128
5.3.4. Vers le roulement pur : $t_5 - t_6$ .....	132
5.3.5. Conclusions .....	133
5.4. <i>Effet de la vitesse de glissement sur la réponse transitoire .....</i>	134
5.5. <i>Effet de la nature de la surface sur la réponse transitoire.....</i>	136
5.6. <i>Conclusions .....</i>	139
<b>Conclusion générale .....</b>	<b>142</b>
<b>Bibliographie .....</b>	<b>145</b>



## Liste des symboles

$A$	Diamètre de la plus petite calotte	[m]
$a$	Rayon du contact de Hertz	[m]
$\alpha$	Coefficient de piézoviscosité	[Pa <sup>-1</sup> ]
$\alpha_{ad}$	Caractéristique de l'adhérence agrégat/surface	[-]
$ACEA$	Association des Constructeurs Européens d'Automobiles	[-]
$A_{Épais}$	Zone lubrifiée par un film d'huile de 12 à 90 nm	[m <sup>2</sup> ]
$A_H$	Aire de contact de Hertz	[m <sup>2</sup> ]
$A_h$	Constante de Hamaker	[J]
$AIISI$	American Iron and Steel Institute	[-]
$A_{Mince}$	Zone lubrifiée par un mince film d'huile de 3 à 4 nm	[m <sup>2</sup> ]
$ANR$	Agence Nationale de la Recherche	[-]
$API$	American Petroleum Institute	[-]
$B$	Diamètre de la plus grande calotte	[m]
$b$	Rayon d'une particule sphérique	[m]
$\beta_{i,j}^{brownien}$	Taux de collision dû au mouvement Brownien	[m <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup> ]
$\beta_{i,j}^{laminaire}$	Taux de collision dû au mouvement du fluide	[m <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup> ]
$CVD$	Chemical Vapor Deposition	[-]
$D$	Épaisseur de dépôt	[m]
$DLC$	Diamond-Like Carbon	[-]
$DLVO$	Derjaguin, Landau, Verwey et Overbeek	[-]
$D_t$	Coefficient de diffusion	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]
$\Delta_t$	Temps de résidence de l'agrégat	[s]
$E$	Module d'élasticité	[Pa]
$EHD$	ÉlastoHydroDynamique	[-]
$Euro$	Normes Européennes d'émission	[-]
$\eta$	Viscosité dynamique	[Pa.s]

$\eta_0$	Viscosité à la pression atmosphérique	[Pa.s]
$\eta_{0/P}$	Viscosité à la pression P	[Pa.s]
$\eta_\infty$	Viscosité au taux de cisaillement élevé	[Pa.s]
$\eta_{Cross}$	Viscosité sous pression issue de courbes en régime stationnaire	[Pa.s]
$\eta_{eff}$	Viscosité effective	[Pa.s]
$\eta_{eff/P}$	Viscosité effective à la pression P	[Pa.s]
$\eta(P)$	Viscosité à la pression P	[Pa.s]
$f$	Force de traînée donnée par la loi de Stokes	[N]
$F_t$	Force de frottement totale	[N]
$F_{tÉpais}$	Force de frottement due à la zone $A_{Épais}$	[N]
<b>FTIR</b>	Fourier-Transform InfraRed spectroscopy	[-]
$F_{tMince}$	Force de frottement liée à la zone $A_{Mince}$	[N]
$G$	Gradient de vitesse	[s <sup>-1</sup> ]
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement	[s <sup>-1</sup> ]
$\dot{\gamma}_0$	Taux de cisaillement associé au modèle d'Eyring	[s <sup>-1</sup> ]
$\dot{\gamma}_C$	Taux de cisaillement critique associé au modèle de Cross	[s <sup>-1</sup> ]
$h$	Épaisseur de film d'huile	[m]
<b>HAP</b>	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques	[-]
$H_{Bourrelet}$	Épaisseur de film relative à la zone $\sum_{Bourrelet}$	[m]
$h_c$	Épaisseur centrale de film d'huile	[m]
$H_{Épais}$	Épaisseur de film relative à la zone $A_{Épais}$ ou $\sum_{Épais}$	[m]
<b>HFCVD</b>	Hot Filament Chemical Vapor Deposition	[-]
$H_{Frontière}$	Épaisseur de film relative à la zone $\sum_{Frontière}$	[m]
$H_{Mince}$	Épaisseur de film relative à la zone $A_{Mince}$ ou $\sum_{Mince}$	[m]
$H_S$	Nombre de Hersey	[m]
$J$	Flux de diffusion d'après la loi de Fick	[s <sup>-1</sup> .m <sup>-2</sup> ]
$K$	Partie imaginaire de l'indice de réfraction	[-]
$k$	Constante de Boltzmann	[J.K <sup>-1</sup> ]

$\lambda$	Longueur d'onde	[m]
$\mu$	Coefficient de frottement	[-]
<i>MCB</i>	Maneton-Coussinet-Bielle	[-]
$\mu_{lim}$	Coefficient de frottement en régime de lubrification limite	[-]
$n$	Paramètre du fluide et partie réelle de l'indice de réfraction	[-]
$\tilde{n}$	Indice de réfraction	[-]
$\nu$	Coefficient de Poisson	[-]
$P$	Pression de contact moyenne	[Pa]
<i>PACVD</i>	Plasma-Assisted Chemical Vapor Deposition	[-]
$P_e$	Nombre de Péclet	[-]
<i>PVD</i>	Physical Vapor Deposition	[-]
$R$	Distance entre deux particules sphériques	[m]
$r$	Rayon de la bille	[m]
$\rho$	Masse volumique	[kg.m <sup>-3</sup> ]
<i>RMS</i>	Root Mean Square : moyenne quadratique	[m]
<i>SAPS</i>	Sulphated Ash, Phosphorus and Sulphur	[-]
$\sum_{Bourrelet}$	Zone lubrifiée par un film d'huile d'épaisseur variable	[m <sup>2</sup> ]
$S_{Épais}$	Taux de couverture de l'agrégat : rapport entre $A_{Épais}$ et $A_H$	[-]
$\sum_{Épais}$	Zone lubrifiée par un film d'huile de 12 à 14 nm	[m <sup>2</sup> ]
$\sum_{Frontière}$	Zone lubrifiée par un film d'huile de 14 à 130 nm	[m <sup>2</sup> ]
$S_{Mince}$	Taux de couverture : rapport entre $A_{Mince}$ et $A_H$	[-]
$\sum_{Mince}$	Zone lubrifiée par un mince film d'huile de 3 à 4 nm	[m <sup>2</sup> ]
<i>SPC</i>	Segments-Piston-Chemise	[-]
$S_{RR}$	Taux de roulement/glisement	[-]
$T$	Température	[K]
$t$	Temps	[s]
$\tau$	Contrainte de cisaillement s'exerçant sur le fluide	[Pa]
$\tau_0$	Contrainte d'Eyring	[Pa]



$t_b$	Temps caractéristique du mouvement Brownien	[s]
$\tau_{\acute{E}pais}$	Contrainte de cisaillement minimale (début de glissement pur)	[Pa]
$T_f$	Température de fusion du matériau déposé en couche mince	[K]
$\tau_{limite}$	Contrainte de cisaillement plastique	[Pa]
$\tau_{Mince}$	Contrainte de cisaillement maximale (fin de glissement pur)	[Pa]
$u$	Vitesse relative des surfaces	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_0$	Fluctuation moyenne de la vitesse d'entraînement	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_{AG}$	Vitesse de l'agrégat	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_B$	Vitesse de la bille	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_D$	Vitesse du disque	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_E$	Vitesse d'entraînement moyenne	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_S$	Vitesse de glissement	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_{Van\ der\ Waals}$	Énergie due aux forces de Van der Waals	[J]
$V$	Volume effectif de la particule	[m <sup>3</sup> ]
$\nu$	Viscosité cinématique	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]
$VI$	Viscosity Index	[-]
$X$	Direction de déplacement	[-]
$z$	Index de piézoviscosité	[-]
$\frac{\partial c}{\partial x}$	Gradient de concentration locale	[m <sup>-4</sup> ]
$(d\gamma/dt)_{\text{cyring}}$	Taux de cisaillement issu de rhéogrammes	[s <sup>-1</sup> ]
$(d\gamma/dt)_{\text{plastique}}$	Taux de cisaillement issu de rhéogrammes	[s <sup>-1</sup> ]

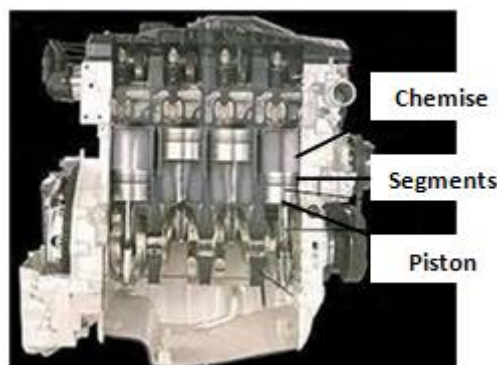
## Introduction générale

Une préoccupation majeure de la société d'aujourd'hui est la protection de l'humain et de son environnement. La société se doit de progresser en conciliant à la fois le développement économique, la croissance des pays émergents, la préservation de l'environnement et la gestion raisonnée des ressources naturelles. Les enjeux écologiques liés au réchauffement climatique, et plus généralement la lutte contre la pollution ont occasionné une révolution sans précédent dans le domaine des transports. En particulier, le durcissement des normes européennes d'émission, Euro, qui fixent les limites maximales de rejets polluants pour les véhicules neufs roulants est une traduction concrète de cette évolution. La Table 1 présente l'évolution de ces normes depuis les années 1990 à nos jours.

Normes	Euro 1 (1/01/1993)	Euro 2 (1/07/1996)	Euro 3 (1/01/2001)	Euro 4 (1/01/2006)	Euro 5 (1/01/2011)	Euro 6 (1/09/2015)
NOx (mg/km)	–	–	500	250	180	80
CO (mg/km)	2720	1000	640	500	500	500
Particules (mg/km)	140	100	50	25	5	4,5

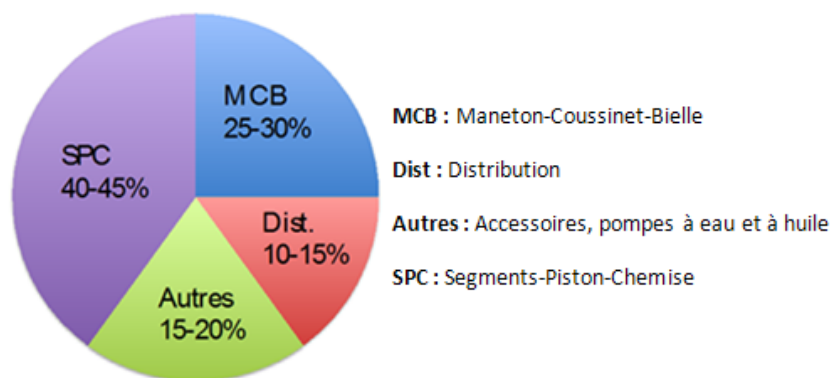
*Table 1 : Évolution des limites d'émission pour les véhicules neufs des particuliers*

En réponse aux options environnementales retenues par l'Union Européenne, les constructeurs automobiles ont largement orienté leur R&D vers des techniques de dépollution et de réduction de la combustion de carburant. À titre d'exemple, un véhicule vendu en 2006 (norme Euro 4) émet globalement deux fois moins de polluants qu'un véhicule mis sur le marché en 2002. Pour atteindre ce résultat, de nombreux progrès technologiques dans le domaine de la motorisation, tels que l'allègement des structures et des filtres à particules, ont été réalisés. On peut noter de plus que depuis 1980, les émissions de particules de suie automobiles pour les moteurs Diesel ont été divisées par quatre et sont réduites à la limite du mesurable, inférieures à 0,005 g/km. En revanche, il n'est pas possible d'éliminer les suies qui transitent de la chambre de combustion dans le lubrifiant via la zone Segments-Piston-Chemise (SPC).



*Figure 1 : Vue en coupe d'un moteur thermique montrant la zone Segments-Piston-Chemise d'après [1]*

La poursuite des innovations technologiques sur les véhicules et les carburants reste un point clé à la fois pour les constructeurs automobiles, les formulateurs de lubrifiants, et les élaborateurs de traitements et revêtements de surfaces. Ainsi, de nombreuses recherches portant sur la diminution des pertes par frottement mécanique dans les moteurs Diesel ont été menées au cours de ces dernières décennies. L'idée proposée est en particulier, d'identifier des voies d'amélioration du rendement mécanique des moteurs à combustion interne Diesel. Dans les moteurs Diesel, le contact Segments-Piston-Chemise (SPC) représente à lui seul près de 40% des pertes d'énergie par frottement mécanique totales du moteur, soit 5 % de la consommation carburant sur cycle (Figure 2).

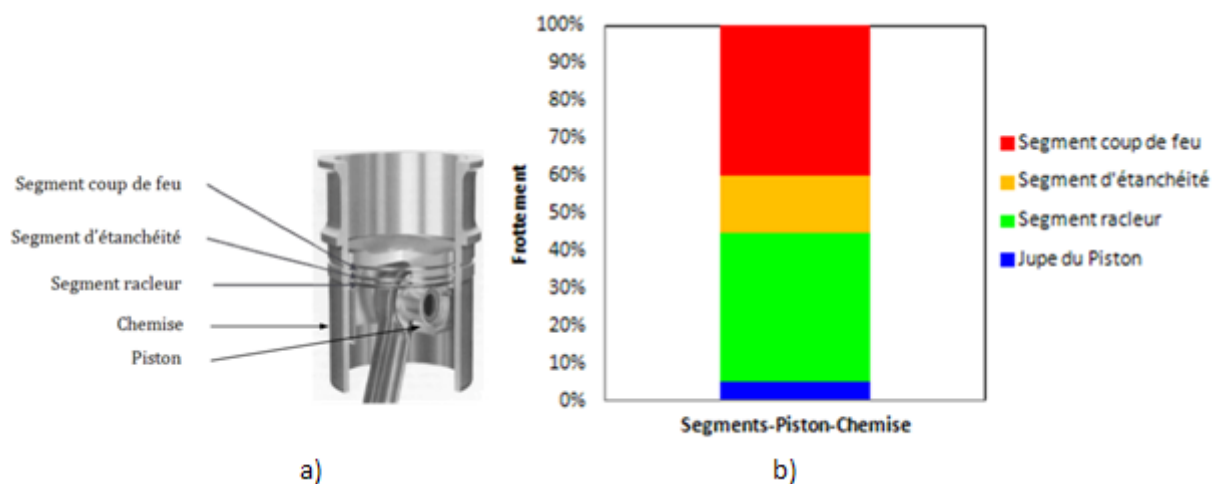


**Figure 2 : Répartition typique du frottement dans un moteur Diesel d'après [2]**

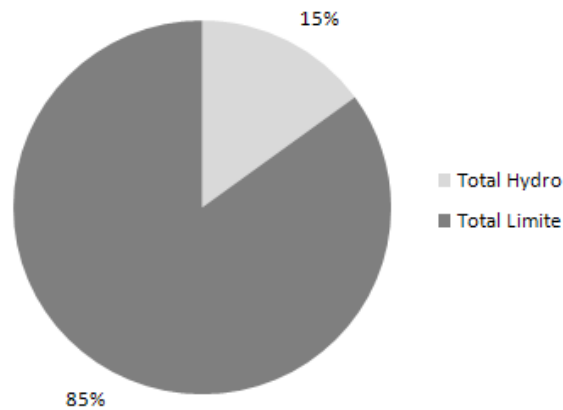
Actuellement un piston est classiquement équipé de trois segments (Figure 3a) :

- Le segment coup de feu,
- Le segment d'étanchéité,
- Le segment racleur.

La contribution de chaque segment et du piston au frottement SPC est représentée sur la Figure 3b. Par ailleurs, dans la zone SPC, le frottement se répartit entre le régime de lubrification hydrodynamique et limite selon la distribution présentée sur la Figure 4.



**Figure 3 : a) Système SPC et b) Répartition moyenne du frottement par éléments**



*Figure 4 : Répartition du frottement SPC selon les régimes de lubrification*

La première constatation est que le frottement SPC est majoritairement concentré sur les segments coup de feu et racleur. La seconde constatation est l'importance du frottement dans le fonctionnement en régime mixte/limite du système SPC. Il est donc essentiel d'étudier le frottement SPC pour ces régimes de lubrification et trouver de nouvelles solutions agissant directement au niveau de la segmentation afin de réduire leurs contributions.

Il apparaît donc nécessaire de provoquer une rupture technologique dans le domaine de la lubrification de la segmentation en modifiant non seulement la nature des surfaces des pièces mécaniques en contact mais également la chimie des additifs de lubrification présents dans les lubrifiants. Cette performance peut être atteinte au niveau du contact SPC à condition de développer de nouveaux revêtements permettant d'augmenter la durabilité des moteurs Diesel et capables de fonctionner sous conditions extrêmes couplant à la fois haute température et environnement agressif, constitué d'un mélange complexe de lubrifiant plus ou moins visqueux, de particules de suie plus ou moins agglomérées et de phases gazeuses provenant de la combustion.

La lubrification d'un contact et le frottement qu'il génère sont gouvernés par différents paramètres :

- Matériaux et état des surfaces en contact,
- Caractéristiques physico-chimiques et rhéologiques de l'huile et notamment la nature des additifs et leur impact sur la dispersion des suies générées lors du fonctionnement du moteur Diesel,
- Sollicitations mécaniques et thermique du contact.

Cette multitude de paramètres regroupe un vaste champ de compétences, parfois transverse et complexe. C'est pourquoi un projet de recherche a été initié entre plusieurs partenaires experts dans ces différents domaines. Il s'agit du projet ANR ECOLUB (**E**conomie d'énergie dans les moteurs Diesel : approche holistique couplant revêtements DLC/Diamant et nouveaux **L**ubrifiants). Le projet de recherche ECOLUB s'appuie sur un partenariat étroit et parfaitement complémentaire d'un constructeur automobile (PSA), d'un groupe pétrolier (TOTAL), d'un

concepteur de revêtements de surface (IREIS), de deux laboratoires de recherche fondamentale, l'un spécialiste de tribologie (LTDS) et l'autre de sciences analytiques (LSA).

Le projet ECOLUB a pour objectif de proposer des solutions durables pour diminuer la consommation du moteur Diesel via la réduction des pertes par frottements dans la zone moteur SPC et de l'usure des pièces dans les moteurs pour augmenter sa durabilité. Pour cela, il est envisagé d'associer des revêtements à base de carbone fonctionnels (matériau multifonctionnel présentant à la fois une dureté élevée, une bonne résistance à l'abrasion et un frottement lubrifié particulièrement bas face aux métaux de l'ordre de 0,1), renforçant la résistance mécanique des surfaces frottantes, avec un lubrifiant à caractère Fuel Economy Low SAPS de haute technologie, basé sur des composants nouveaux et répondant aux normes ACEA (Association des Constructeurs Européens d'Automobiles), optimisé pour ce type de revêtement, constitué de nouveaux additifs de lubrification spécifiques ajoutés dans le lubrifiant. Deux approches sont développées au sein de ce projet : la première est focalisée sur le développement de nouveaux lubrifiants en synergie avec les revêtements à base de carbone fonctionnels, la deuxième concerne la compréhension des mécanismes de lubrification de ces revêtements en présence de lubrifiants vieillis en fonctionnement, pour des conditions cinématiques de contact stationnaires et transitoires.

Cette thèse est le cœur de la deuxième approche du projet ECOLUB. Elle s'appuie sur des outils de tribométrie originaux pour reproduire les cinématiques particulières des contacts impliqués au niveau de la segmentation et ainsi balayer l'ensemble des régimes de lubrification pour des contacts DLC lubrifiés. Cette thèse s'attache à identifier l'influence d'un lubrifiant vieilli en fonctionnement (impact de la solubilisation du carburant, des particules de suie et d'oxydation) sur les mécanismes de lubrification de couches minces dures de type DLC, du régime hydrodynamique au régime limite en passant par la lubrification mixte. Cette thèse s'intéresse plus particulièrement aux phénomènes transitoires générés par le passage des suies, ou par une annulation temporaire de la vitesse d'entraînement représentative des cinématiques de contact observées en zone SPC, sur les mécanismes de lubrification et les mécanismes de frottement associés.

Après avoir situé l'intérêt du sujet vis-à-vis des enjeux industriels et scientifiques, le **chapitre 1** dresse un état de l'art de la lubrification des moteurs Diesel en présence de suies. La synthèse des phénomènes mis en jeu lors de l'utilisation d'un lubrifiant vieilli contenant des particules de suie permet d'identifier les verrous scientifiques et techniques à lever.

Focalisé sur la modification de la nature des surfaces, le **chapitre 2** présente les principales techniques d'élaboration des couches minces de type DLC ainsi que la caractérisation des dépôts développés et utilisés dans le cadre de cette thèse.

Le **chapitre 3** présente, au travers d'une analyse expérimentale, les mécanismes de lubrification pour plusieurs surfaces et lubrifiants, dont le lubrifiant formulé vieilli, en régime stationnaire à partir de la connaissance simultanée de la cinématique de contact, des épaisseurs de film lubrifiant et des forces de frottement. En particulier, ce chapitre étudie la capacité des

lubrifiants à former un film séparant les surfaces et leur réponse en frottement en fonction des surfaces, revêtues DLC ou non.

Le comportement tribologique du film interfacial est étudié dans le **chapitre 4**, dans un régime stationnaire, au travers d'une cinématique bien particulière qui permet l'observation directe d'un phénomène rapide d'agrégation des suies qui se déplacent au sein d'un contact lubrifié. Une loi additive est proposée afin d'interpréter l'origine du frottement et de son évolution en fonction du temps de cisaillement. Les conditions tribologiques sont ensuite modifiées afin d'étudier le rôle de la vitesse de glissement et son influence sur les phénomènes d'agrégation observés.

Plusieurs cinématiques trapézoïdales, alternant des phases de roulement pur et de glissement pur via des rampes linéaires de vitesses, ont été utilisées dans le **chapitre 5** pour simuler le comportement tribologique de divers couples lubrifiant/surfaces dans des sollicitations transitoires d'accélération et de décélération afin d'analyser les mécanismes d'agrégation des suies dans un contact lubrifié et leur corrélation avec le frottement. Nous proposons ensuite une modélisation rhéologique de la force de frottement générée par les interfaces lubrifiées lors de ces régimes transitoires en couplant les mesures instantanées d'épaisseur de film d'huile à celles de la contrainte de cisaillement associée. En appui sur ces interprétations physiques, les effets de la vitesse ainsi que la nature des surfaces sont également analysés.

# Chapitre 1

## Lubrification des moteurs Diesel en présence de suies

### Sommaire

1.1.	<i>Introduction</i> .....	23
1.2.	<i>Lubrifiant moteur : un produit multifonctions</i> .....	23
1.2.1.	Composition des lubrifiants .....	23
1.2.2.	Propriétés rhéologiques des lubrifiants .....	26
1.2.3.	Vieillessement des lubrifiants .....	33
1.3.	<i>Le lubrifiant vieilli : un système colloïdal complexe</i> .....	35
1.3.1.	Les lubrifiants moteur en tant que suspensions colloïdales .....	35
1.3.2.	Les forces interparticulaires dans les milieux dispersés .....	37
1.3.3.	Stabilité statique des suspensions colloïdales .....	39
1.3.4.	Diffusion de particules colloïdales dans un fluide visqueux : impact sur la rhéologie.....	39
1.4.	<i>Mécanismes de lubrification en présence de suies</i> .....	40
1.4.1.	Régimes de lubrification .....	40
1.4.2.	Influence de la présence des suies .....	43
1.5.	<i>Conclusions</i> .....	46

## 1.1. Introduction

Pour assurer un bon fonctionnement du moteur, certains organes comme les paliers, l'arbre à cames et l'assemblage Segments-Piston-Chemise (SPC) nécessitent d'être lubrifiés. Pour y parvenir, un film de lubrifiant est généralement interposé entre les organes en contact et en mouvement relatif pour empêcher d'atteindre des contraintes de cisaillement extrêmes à l'interface et diminuer les pertes d'énergie par frottement mécanique. Au cours du fonctionnement du moteur, le lubrifiant finit par vieillir irrémédiablement. Il se dégrade perpétuellement dans des zones bien spécifiques, comme la zone Segments-Piston-Chemise qui regroupe les conditions les plus sévères pour le lubrifiant. Les sources de dégradations sont multiples (température du lubrifiant, gaz de combustion, carburant imbrûlé, matières carbonneuses, charge appliquée au moteur) et proviennent des conditions de fonctionnement du moteur et de son environnement. Dans le cadre d'un fonctionnement normal du moteur, les suies impactent fortement la dégradation du lubrifiant et entraînent une modification irréversible du fonctionnement tribologique des organes concernés. Les performances tribologiques du lubrifiant vont se mesurer, d'une part, par la rhéologie du lubrifiant et le frottement associé, et d'autre part, par une diminution de la protection du moteur. La connaissance et le contrôle du vieillissement des lubrifiants sont primordiaux pour maîtriser la durée de vie et la fiabilité du moteur.

La première partie de ce chapitre présente le lubrifiant moteur d'un point de vue de sa composition, de ses propriétés rhéologiques et de son vieillissement. La deuxième partie du chapitre présente le lubrifiant vieilli en tant que suspension colloïdale et aborde la notion de forces interparticulaires, de stabilisation et de diffusion des particules colloïdales dans un fluide visqueux. Enfin, la troisième partie du chapitre présente un état de l'art sur les mécanismes de lubrification en présence de particules solides de suies.

## 1.2. Lubrifiant moteur : un produit multifonctions

### 1.2.1. Composition des lubrifiants

La formulation d'une huile commence par le choix du mélange des bases afin d'apporter les caractéristiques de rhéologie et de point d'écoulement essentielles au lubrifiant. Il est possible de classer les huiles de base en trois catégories distinctes :

- **Les bases végétales** proviennent de plantes oléagineuses. Elles sont biodégradables et offrent de bonnes performances tribologiques. Ces bases restent malgré tout très peu utilisées à l'heure actuelle dans la formulation des huiles moteurs en raison de leur viscosité élevée et de leur manque de stabilité.
- **Les bases minérales** sont essentiellement obtenues à partir du pétrole brut. Elles se composent principalement d'hydrocarbures saturés, paraffines et naphthènes, ainsi que d'hydrocarbures insaturés, les aromatiques. Ces huiles offrent de bonnes performances à froid grâce aux paraffines ainsi qu'un bon pouvoir solvant et de bonnes propriétés rhéologiques. Ces bases sont de fait très utilisées dans la formulation des huiles moteurs.
- **Les bases synthétiques** sont obtenues par synthèse chimique et se composent de molécules reconstituées, modelées et taillées sur mesure dans des conditions de température et de pression complètement maîtrisées. Ces huiles ne contiennent en général aucun des composés instables ou impuretés (composés sulfurés et acides,



composés azotés, oxygène, impuretés métalliques) décelables dans les huiles minérales qui peuvent nuire à une bonne lubrification. Les bases synthétiques offrent des propriétés rhéologiques supérieures aux bases minérales (indice de viscosité supérieur à 120 et point d'écoulement bas) et une bonne résistance à l'oxydation.

Les bases minérales et synthétiques sont répertoriées en cinq groupes selon la classification API (American Petroleum Institute). Elles se différencient selon trois critères : leur pourcentage massique en hydrocarbures saturés, leur pourcentage massique en soufre et leur indice de viscosité (Table 2). Les groupes I à III caractérisent les bases minérales et les groupes IV, V, les bases synthétiques.

	Bases minérales			Bases synthétiques	
	Groupe I	Groupe II	Groupe III	Groupe IV	Groupe V
<b>Hydrocarbures saturés en masse %</b>	< 90	≥ 90	≥ 90	PAO	Esters et autres
<b>Soufre en masse %</b>	> 0,03	≤ 0,03	≤ 0,03		
<b>Indice de viscosité</b>	< 120	< 120	>120		

*Table 2 : Classification API (American Petroleum Institute) des huiles de base minérales et synthétiques - adapté de [3]*

Les lubrifiants moteur possèdent des propriétés et des caractéristiques très variées qui diffèrent le plus souvent entre un moteur Diesel et un moteur essence. D'une façon générale, les lubrifiants se composent de deux éléments fondamentaux : un mélange de bases minérales et/ou synthétiques, auquel on ajoute une quantité d'additifs (de 5 à plus de 20 % en masse) pour les dernières huiles multigrades pour moteurs Diesel fortement suralimentés (Figure 5). En effet, malgré les propriétés remarquables des huiles de base, la protection complète du moteur ne peut être obtenue que par des additifs spécifiques. Ces derniers viennent alors renforcer ou apporter de nouvelles propriétés aux huiles de base. Ces additifs, d'origine et de structure très variées, se décomposent de la manière suivante :

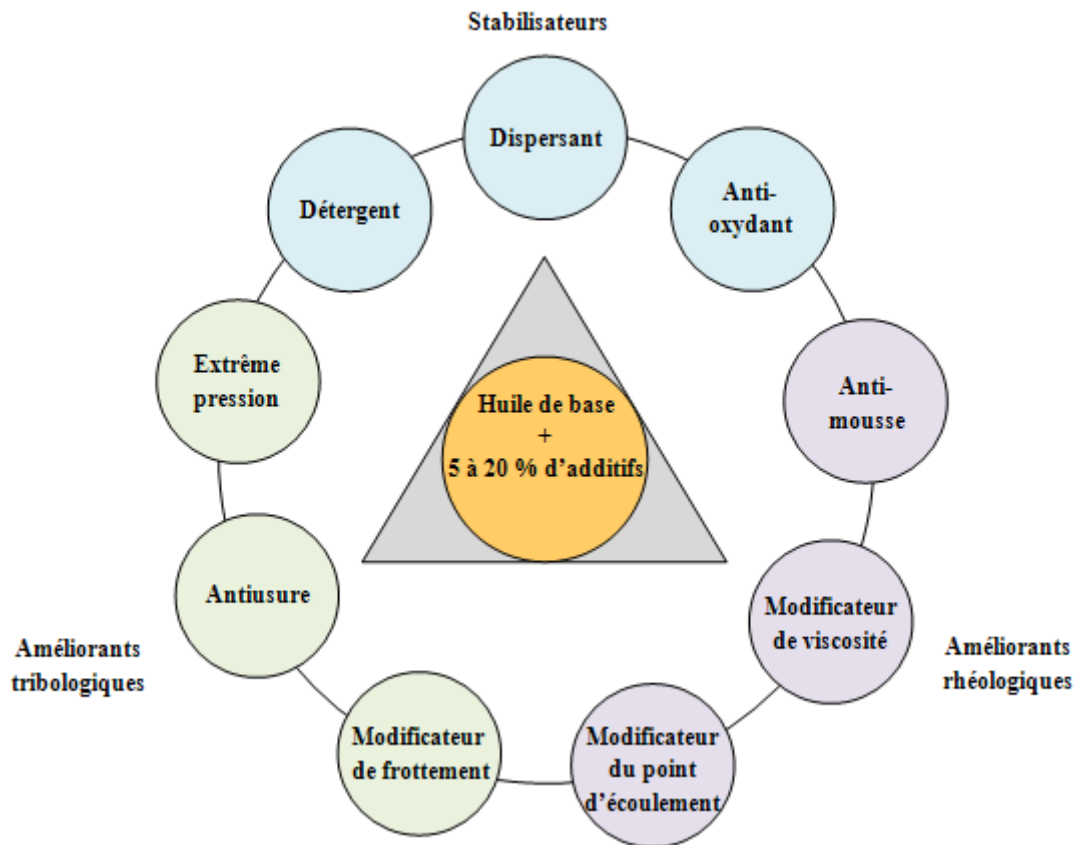
- ✓ **Additif modificateur de viscosité** : ce sont des polymères qui agissent comme épaississant à chaud et restent inertes à froid. Le mécanisme d'action de cet additif réside dans la force des interactions solvant/polymères. Celle-ci dépend directement de la température et provoque un déploiement des pelotes de polymères lorsque l'agitation thermique augmente,
- ✓ **Additif modificateur de frottement** : ce sont des composés organiques, souvent de nature polaire, utilisés pour limiter le coefficient de frottement dans des régimes de lubrification mixte et limite. Le mécanisme d'action de cet additif est alors l'adsorption aux surfaces par physisorption ou chimisorption,
- ✓ **Additif antiusure** : ces composés créent un film protecteur sur les surfaces qui va alors s'user et se renouveler au cours du cycle moteur. Le mécanisme d'action de cet additif débute par une physisorption sur la couche d'oxyde des surfaces, puis par une

décomposition chimique et une adsorption des produits de décomposition pour former ensuite la couche protectrice,

- ✓ **Additif anticorrosion** : il prévient la formation de corrosion sur les pièces métalliques. Ces composés agissent sur les surfaces en formant un film protecteur physisorbé mais également au cœur du lubrifiant en neutralisant les acides de combustion et les produits d'oxydation,
- ✓ **Additif antioxydant** : ce sont des composés organiques qui protègent les huiles de base contre l'oxydation. Le mécanisme d'action dépend de la nature de l'additif. Par exemple, les phénols et les amines vont agir sur des radicaux libres pour empêcher la propagation de l'oxydation tandis que les dithiophosphates de métaux vont détruire les peroxydes qui sont des produits formés au cours du processus d'oxydation,
- ✓ **Additif antimousse** : ce sont des polymères, insolubles dans le milieu, qui s'agregent à l'interface air/huile où se trouvent également les films tensio-actifs responsables des mousses. Le mécanisme d'action est alors la destruction et/ou la stabilisation de la mousse, par l'élimination ou la modification partielle ou totale, des films superficiels,
- ✓ **Additif détergent** : ce sont des composés organo-métalliques polaires qui maintiennent les impuretés en suspension. Le mécanisme d'adsorption de cet additif sur les impuretés du lubrifiant (telles que les suies) conduit à des forces de répulsion qui assurent leur solubilisation dans l'huile,
- ✓ **Additif dispersant** : il permet de neutraliser, solubiliser et disperser les particules solides générées par le moteur et les produits de réactions chimiques. Le mécanisme d'action de cet additif est dû à l'adsorption de molécules à la surface des particules solides empêchant ainsi le contact direct entre ces dernières.

Ainsi, les propriétés obtenues à partir de la formulation complexe des huiles permettent de satisfaire les exigences les plus sévères imposées par les constructeurs automobiles. Les fonctions désirées sont nombreuses et font des lubrifiants des produits de haute technologie :

- ✓ Faciliter la mise en route des organes à toutes les températures,
- ✓ Réduire les pertes mécaniques par frottement et diminuer les températures de fonctionnement des surfaces en contact,
- ✓ Combattre l'usure des surfaces en contact,
- ✓ Protéger les organes mécaniques contre la corrosion,
- ✓ Contribuer à l'étanchéité aux gaz et aux liquides comme pour les segments de la zone SPC,
- ✓ Nettoyer les surfaces et les circuits,
- ✓ Absorber les chocs et réduire le bruit.



*Figure 5 : La formulation d'un lubrifiant se compose généralement de deux éléments fondamentaux : un mélange de bases (minérales et/ou synthétiques), auxquelles on rajoute une quantité d'additifs de 5 jusqu'à plus de 20 % en masse*

### 1.2.2. Propriétés rhéologiques des lubrifiants

Les lubrifiants moteur contiennent de nombreuses molécules dont la structure et la taille contrôlent, au premier ordre, une propriété physique fondamentale en lubrification par voie liquide : la viscosité (cinématique ou dynamique). La viscosité, qui dépend fortement de la température, de la pression et de la vitesse de déformation, impacte directement sur les pertes mécaniques par frottement, la capacité de charge et les épaisseurs de films d'huile [4]. Par conséquent, la viscosité du lubrifiant est habituellement choisie afin d'assurer, en terme d'énergie, une performance optimale en fonction de la température de fonctionnement du système mécanique. Si le lubrifiant est trop visqueux, il faudra fournir beaucoup plus d'énergie pour mettre des organes en mouvement, ceci engendrant des consommations d'énergie excessive avec réduction des rendements. Si l'huile est trop fluide, la qualité de la lubrification est réduite avec un risque d'usure prématuré des organes en mouvement.

La viscosité dynamique,  $\eta$ , caractérise la résistance d'un fluide à l'écoulement sous cisaillement. Elle est déduite de la loi de Newton régissant l'écoulement laminaire d'un fluide visqueux entre une surface mobile animée d'une vitesse  $u$  et une surface fixe distante de la surface mobile d'une distance  $h$  égale à l'épaisseur du film d'huile (Figure 6). Elle s'exprime :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (1)$$

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (2)$$

avec :

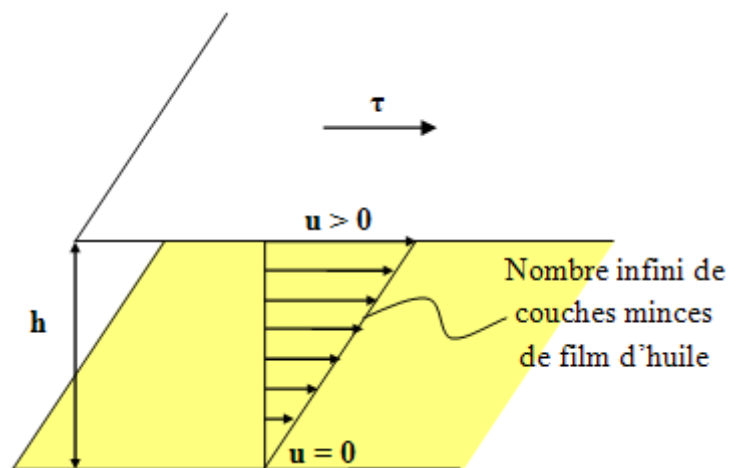
$\eta$  est la viscosité dynamique [Pa.s],

$\tau$  est la contrainte de cisaillement s'exerçant sur le fluide [Pa],

$u$  est la vitesse relative des surfaces [m.s<sup>-1</sup>],

$h$  est l'épaisseur de film d'huile [m],

$\dot{\gamma}$  est le taux de cisaillement [s<sup>-1</sup>].



*Figure 6 : Représentation schématique du film lubrifiant séparant deux surfaces planes en contact - adapté de [3]*

La viscosité cinématique est déduite de la mesure du temps d'écoulement d'un volume d'huile fixé dans un tube capillaire de géométrie connue. Elle est aussi définie comme le rapport entre la viscosité dynamique et la masse volumique du lubrifiant :

$$\nu = \frac{\eta}{\rho} \quad (3)$$

avec :

$\nu$  est la viscosité cinématique [ $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ],

$\eta$  est la viscosité dynamique [ $\text{Pa.s}$ ],

$\rho$  est la masse volumique [ $\text{kg. m}^{-3}$ ].

### Effet de la température

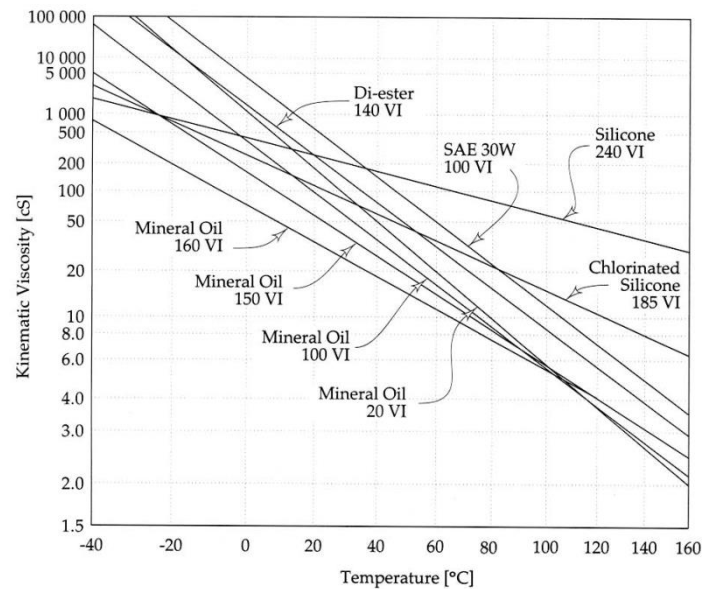
La viscosité des lubrifiants, formulés ou non, varie énormément avec la température : plus la température augmente et plus la viscosité décroît. Néanmoins, cette variation dépend de leurs structures chimiques [3]. Un critère plus industriel que la viscosité a été introduit pour différencier aisément le comportement des huiles sur de grandes plages de températures : l'indice de viscosité (VI, pour Viscosity Index). Il est basé sur la comparaison à 40 et 100 °C de la viscosité de l'huile considérée avec celle de deux huiles de familles différentes dont les VI sont arbitrairement fixés à 0 et 100. Plus la valeur de l'indice de viscosité est grande et plus la viscosité du lubrifiant est stable en dépit de l'augmentation de température. Le contrôle précis de l'indice de viscosité permet d'assurer la qualité et la stabilité de l'huile pour une utilisation donnée.

Il est possible de modéliser l'évolution de la viscosité en fonction de la température (Figure 7) de différentes manières selon plusieurs lois plus ou moins empiriques rappelées dans la table ci-dessous (Table 3) :

Loi	Modèle	Commentaires
Reynolds	$\eta = b e^{-aT}$	Le plus simple, valable sur de petites plages de température
Walther	$(\nu + a) = b d^{1/T^c}$	Modèle de l'ASTM
Vogel	$\eta = a e^{\frac{b}{T-c}}$	Le plus précis

*Table 3 : Modèles les plus utilisés pour décrire l'évolution de la viscosité d'une huile en fonction de la température - d'après [3]*

En confrontant ces modèles aux mesures expérimentales, on observe que la meilleure approximation de l'évolution de la viscosité en fonction de la température est donnée par la loi de Vogel [3].



*Figure 7 : Évolution de la viscosité cinématique en fonction de la température pour une sélection de lubrifiants dans le diagramme ASTM - d'après [3]. L'indice de viscosité des lubrifiants est également porté sur la figure*

### Effet de la pression

L'effet de la pression est tout aussi important que l'effet de la température car la compressibilité des huiles joue un rôle important dans la formation des films lubrifiants et en particulier, dans les contacts. Ainsi, sous pression, la viscosité augmente fortement et le lubrifiant tend alors vers un état solide. Pour un lubrifiant considéré, la valeur du coefficient de piézoviscosité  $\alpha$  permet de quantifier l'impact de la pression sur la viscosité. Ce coefficient, généralement compris entre  $5 \cdot 10^{-9}$  et  $40 \cdot 10^{-9} \text{ Pa}^{-1}$ , dépend de la température du lubrifiant : sa valeur diminue lorsque la température augmente. L'effet piézovisqueux du lubrifiant doit être pris en compte car il pilote la mise sous pression du lubrifiant et gouverne en partie l'établissement des films lubrifiants en régime de film complet [5].

La loi de Barus [6] permet de déterminer, en première approximation et pour des pressions de contact modérées ( $\approx 200 \text{ MPa}$ ), la viscosité sous pression à une température donnée en fonction de la viscosité à pression atmosphérique, du coefficient de piézoviscosité et de la pression moyenne qui règne dans le contact :

$$\eta(P) = \eta_0 \exp(\alpha P) \quad (4)$$

avec :

$\eta(P)$  est la viscosité à la pression  $P$  [Pa.s],

$\eta_0$  est la viscosité à la pression atmosphérique [Pa.s],

$\alpha$  est le coefficient de piézoviscosité [ $\text{Pa}^{-1}$ ] dont la valeur peut être mesurée expérimentalement ou bien encore approchée par la relation de Wooster [3] :

$$\alpha = (0,6 + 0,965 \log \eta_0) \cdot 10^{-8} \quad (5)$$

Plus tard, Roelands [7] exprime de manière plus précise la relation reliant la viscosité et la pression :

$$\eta(P) = \eta_0 \exp\left(\left[\alpha \frac{P_0}{z}\right] \left[-1 + \left[1 + \frac{P}{P_0}\right]^z\right]\right) \quad (6)$$

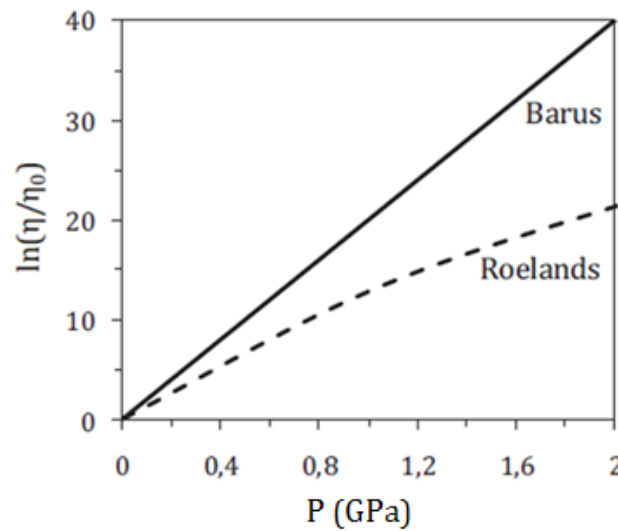
$$\alpha \frac{P_0}{z} = \ln(\eta_0) + 9,67 \quad (7)$$

avec :

**z** est l'index de piézoviscosité et vaut typiquement 0,6 [-],

**P<sub>0</sub>** est une constante de pression du modèle et vaut typiquement  $1,98 \cdot 10^8$  [Pa].

La Figure 8 compare les relations de Barus et de Roelands en considérant le cas d'une huile minérale pour laquelle le coefficient de piézoviscosité vaut typiquement  $20 \text{ GPa}^{-1}$ . Pour les valeurs de pression élevées, supérieures à 0,2 GPa, la loi de Barus surestime considérablement l'accroissement de viscosité. Le choix de l'une ou l'autre des relations pour déterminer l'évolution de la viscosité relative  $\eta/\eta_0$  en fonction de la pression est de premier ordre.



*Figure 8 : Comparaison de l'évolution de la viscosité relative  $\eta/\eta_0$  en fonction de la pression pour une huile minérale de coefficient de piézoviscosité  $\alpha$  de  $20 \text{ GPa}^{-1}$ , d'index de piézoviscosité  $z$  de 0,6 et pour une constante de pression  $P_0$  de  $1,98 \cdot 10^8 \text{ Pa}$  - d'après [8]. La courbe continue correspond à l'estimation selon la loi de Barus tandis que la courbe discontinue correspond à l'estimation issue de la loi de Roelands. Au-delà de 0,2 GPa, le modèle de Barus surestime considérablement la viscosité sous pression*

## Effet du cisaillement

Les huiles minérales et synthétiques ne comportant pas d'additif améliorant l'indice de viscosité sont souvent considérées comme des fluides Newtoniens, c'est-à-dire des liquides dont la viscosité est parfaitement indépendante du taux de cisaillement [3]. Néanmoins, de nombreux fluides n'obéissent plus à cette loi lorsque le taux de cisaillement (ou vitesse de déformation) atteint des valeurs suffisamment élevées. On parle alors de fluides non-Newtoniens. Il existe deux types de comportement non-Newtonien : les fluides non-Newtoniens au comportement indépendant du temps, et les fluides non-Newtoniens au comportement dépendant du temps.

Ainsi, les fluides rhéofluidifiants ou pseudoplastiques, dont le comportement est indépendant du temps, voient leur viscosité diminuer quand le taux de cisaillement augmente. Différents modèles ont été proposés pour décrire ces comportements. Le modèle d'Eyring [9],[10] suppose que l'écoulement du fluide résulte d'un processus thermiquement activé au cours duquel un élément unitaire de fluide se déplace d'un point d'équilibre à un autre. Dans ce modèle, la viscosité varie comme :

$$\eta = \frac{\tau_0}{\dot{\gamma}} \operatorname{argsinh}\left(\frac{\dot{\gamma}}{\dot{\gamma}_0}\right) \quad (8)$$

où  $\tau_0$  est la contrainte d'Eyring au-delà de laquelle les effets non-Newtoniens apparaissent, et  $\dot{\gamma}_0$  le taux de cisaillement associé tel que  $\eta_0 = \tau_0/\dot{\gamma}_0$ ,  $\eta_0$  la viscosité Newtonienne.

Un autre modèle, celui proposé par Cross, considère que la diminution de la viscosité associée à une augmentation des taux de cisaillement s'explique par la formation et la rupture de liens structuraux [11]. La viscosité s'écrit :

$$\eta = \eta_\infty + \frac{\eta_0 - \eta_\infty}{1 + \left[\frac{\dot{\gamma}}{\dot{\gamma}_C}\right]^n} \quad (9)$$

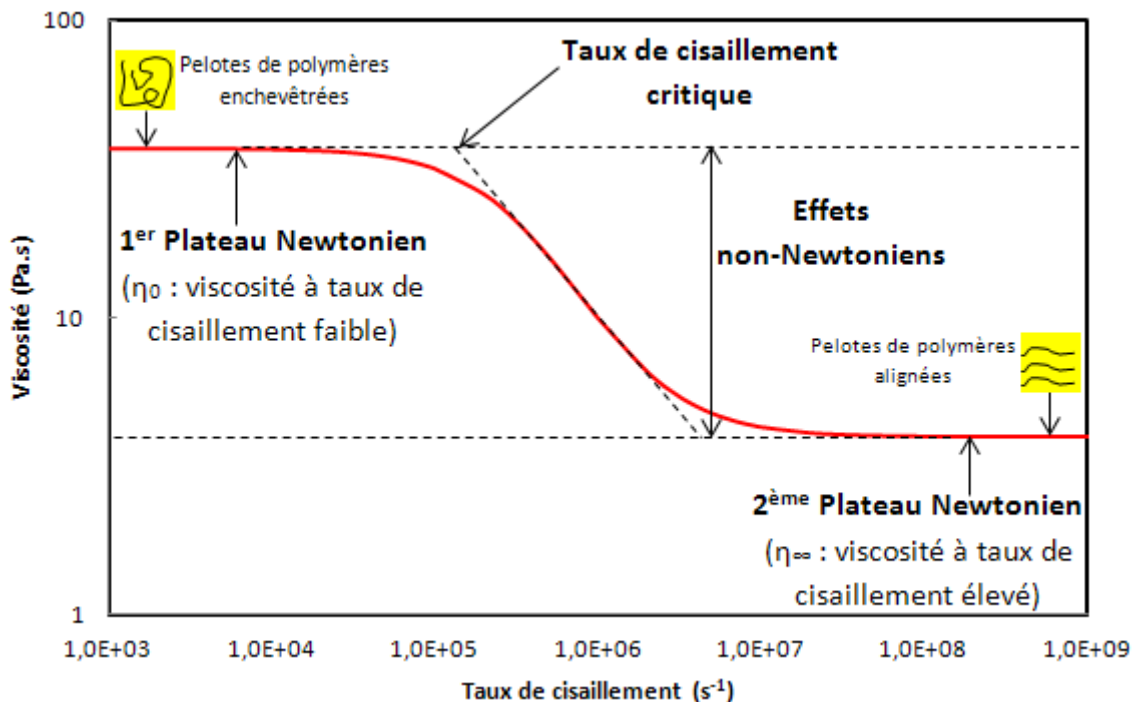
où  $\eta_0$  est la viscosité Newtonienne aux faibles taux de cisaillement, et  $\eta_\infty$  est la viscosité Newtonienne aux taux de cisaillement élevés.  $\dot{\gamma}_C$  est le taux de cisaillement critique, et  $n$  est un paramètre du fluide.

Les fluides viscoplastiques, quant à eux, présentent un premier comportement Newtonien puis la viscosité varie avec le taux de cisaillement. La contrainte de cisaillement atteint une valeur constante, limite, dite contrainte plastique, indépendante du taux de cisaillement. Les fluides à seuils s'écoulent au-delà d'une certaine contrainte seuil, de façon Newtonienne ou rhéofluidifiante.

Le comportement peut également dépendre du temps. Ainsi, pour les fluides thixotropes, la viscosité diminue quand le taux de cisaillement augmente et ce, de façon temporaire. Le mécanisme d'action résulte de la destruction temporaire de la structure sous cisaillement suivie de sa reformation au-delà d'un certain temps [12].



Les lubrifiants moteur multigrades à haut VI présentent habituellement un comportement rhéofluidifiant. Ces lubrifiants modernes sont sensibles au cisaillement mécanique et voient leur viscosité chuter de façon réversible lorsque la vitesse de déformation est élevée (Figure 9) et de façon permanente après un certain temps de fonctionnement sous haute vitesse de déformation.



*Figure 9 : Évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour un lubrifiant moteur multigrade à haut VI - d'après [13]. Un comportement non-Newtonien de type rhéofluidifiant est mis en évidence. Plus le taux de cisaillement augmente et plus la viscosité du lubrifiant diminue. À faible taux de cisaillement, les polymères (additifs) sont sous forme de pelotes ce qui donne la viscosité initiale du lubrifiant. Plus le taux de cisaillement augmente et plus les pelotes de polymères se déroulent ce qui fait chuter la viscosité du lubrifiant. Lorsque le cisaillement est tel que toutes les pelotes de polymères sont complètement déroulées, la viscosité finale du lubrifiant correspond à la viscosité de l'huile de base seule*

Ainsi, l'ajout d'additifs modificateurs de viscosité aux huiles de base, tels que des polymères, modifie le comportement rhéologique dès lors que le taux de cisaillement atteint habituellement  $10^4 \text{ s}^{-1}$ . En effet, les pelotes de polymères utilisées comme additif s'alignent au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente ce qui provoque une chute de viscosité du mélange. Le mécanisme d'alignement des polymères provient des interactions entre les forces hydrodynamiques dues à l'écoulement, et les forces solvant/polymères dues à l'agitation thermique [13]. La chute de viscosité s'amorce lorsque les forces hydrodynamiques sont supérieures aux forces thermiques. Cette chute est caractérisée par le taux de cisaillement critique, signature du polymère introduit dans le lubrifiant. La description précise de ces forces sera abordée dans la partie 1.3 du chapitre.

### 1.2.3. Vieillessement des lubrifiants

#### 1.2.3.1. Les différents types de dégradation

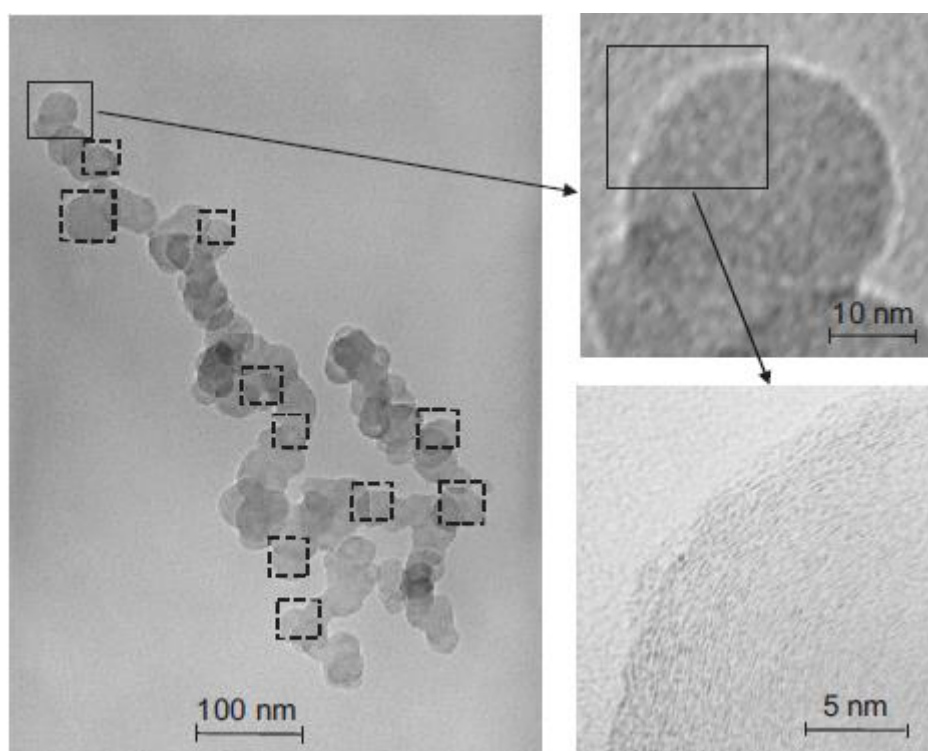
La connaissance et la maîtrise du vieillissement des lubrifiants sont primordiales pour la durée de vie et la fiabilité d'un moteur. Les sources de dégradation des lubrifiants sont multiples et proviennent du fonctionnement du moteur et de ses conditions thermodynamiques sévères, de l'environnement riche en air et en gaz de combustion, du régime et de la charge appliquée au moteur. Les dégradations résultent, entre autres, des impuretés telles que des suies, des particules d'usure, des produits de combustion et du liquide de refroidissement [13]. Les différents types de dégradation que subit le lubrifiant sont décrits ci-après :

- **Phénomènes d'oxydation** : une réaction chimique de type oxydo-réduction dégrade le lubrifiant en présence d'oxygène. La théorie des réactions en chaînes de radicaux libres s'applique au phénomène d'oxydation des hydrocarbures. Les radicaux libres sont des molécules comportant au moins un électron libre dans une couche externe. Ils sont capables d'extraire un électron des molécules voisines pour combler la vacance de leur couche externe et possèdent une grande réactivité chimique. Korcek et al [14] proposent un mécanisme d'oxydation des huiles moteur en plusieurs étapes. Selon eux, l'oxydation du lubrifiant est initiée par des radicaux libres provenant de la combustion. Afin de lutter contre le mécanisme d'oxydation, des additifs inhibiteurs de radicaux libres (antioxydants) sont utilisés,
- **Phénomènes de nitration** : les gaz produits dans la chambre de combustion génèrent des oxydes d'azote ( $\text{NO}_x = \text{NO}$  et  $\text{NO}_2$ ) qui forment, par réactions chimiques, des produits corrosifs et vont ensuite rejoindre le bas moteur via l'assemblage SPC [15]. Les interactions des  $\text{NO}_x$  avec le package d'additifs et les composants de l'huile de base sont présentées comme une source importante de consommation des antioxydants,
- **Phénomènes d'évaporation** : les températures rencontrées dans un moteur sont supérieures à 120 °C. Ceci induit l'évaporation des hydrocarbures les plus légers du lubrifiant et entraîne une modification de la rhéologie du lubrifiant moteur ainsi qu'une surconsommation de l'huile [13]. Ce phénomène est d'autant plus important avec l'augmentation de la thermique des moteurs depuis la généralisation du concept de « downsizing »,
- **Contaminations solides et liquides** : les particules solides sont les particules d'oxydation, les particules d'usure ainsi que les matières charbonneuses issues de la combustion. Ces particules conduisent d'une part, à une augmentation plus ou moins significative de la viscosité ce qui perturbe les mécanismes de lubrification et d'autre part, elles provoquent une consommation importante des additifs détergents et dispersants. La pollution par les liquides concerne la dilution de carburant, le liquide de refroidissement et l'eau. Les deux effets majeurs de la contamination par les liquides sont une chute de viscosité et une consommation rapide des additifs antioxydants [13],
- **Cisaillement des polymères** : le cisaillement des chaînes de polymère concerne les additifs modificateurs de viscosité et peut se manifester par un cisaillement mécanique et/ou un cisaillement thermique sous contrainte [16]. Le cisaillement conduit à un raccourcissement des chaînes de polymères et entraîne une modification irréversible de la rhéologie du lubrifiant moteur.

Toutes ces dégradations engendrent une modification irréversible de la rhéologie du lubrifiant, de ses propriétés et une diminution de la protection du moteur. Ces phénomènes se produisent en particulier dans la zone SPC du fait des conditions mécaniques, chimiques et thermiques. La source principale de dégradation du lubrifiant dans les moteurs Diesel est causée par les particules solides de suies. C'est pourquoi il convient de comprendre le processus de formation des suies ainsi que celui de leur passage dans l'huile.

#### 1.2.3.2. Mécanismes de formation des suies

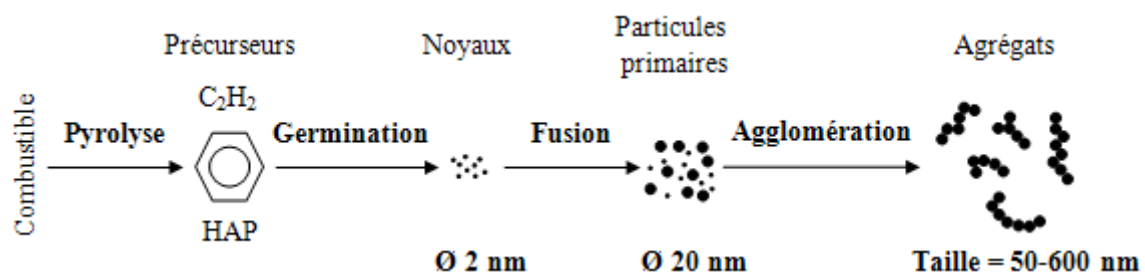
Les suies présentes dans l'huile des moteurs Diesel sont principalement formées dans la chambre de combustion [17] et proviennent de la combustion incomplète de combustibles fossiles [18] (essence, gazole, fioul, kérosène ou charbon). Les matières charbonneuses, riches en carbone [19], se présentent sous la forme de particules élémentaires solides d'aspect noirâtre plus ou moins sphériques dont le diamètre est d'environ 20 nm [20]. La cinétique de formation des suies est très rapide, de l'ordre de quelques millisecondes. Les particules de suie émises forment alors des agglomérats dont le diamètre est de 50 à 600 nm que l'on retrouve en partie dans le lubrifiant (Figure 10).



*Figure 10 : Images issues de Microscopie Électronique à Transmission (MET) qui montrent la forme et la structure interne d'un agglomérat de suies ainsi que ses particules primaires - d'après [21]*

Les mécanismes de formation des suies demeurent l'un des problèmes les moins bien résolus de la combustion mais on admet généralement qu'il se produit en 3 étapes (Figure 11) :

- ✓ **La germination des particules de suie** : plusieurs mécanismes expliquent la formation des précurseurs de suies en fonction du carburant initial. La pyrolyse (décomposition d'un composé organique par la chaleur) des carburants au centre de la flamme en l'absence de dioxygène aboutit à la formation de produits essentiellement de même espèce. Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) et les acétylènes sont les principaux constituants qui donneront naissance aux noyaux de carbone de diamètre inférieur à 2 nm durant l'étape de germination,
- ✓ **La fusion des suies** : la collision entre les particules issues de la germination et des particules issues de la phase gazeuse conduit à la fusion d'unités sphériques d'environ 20 nm de diamètre : les particules primaires. Le taux de croissance des suies s'atténue au fur et à mesure que les particules primaires s'éloignent du centre de la flamme,
- ✓ **L'agglomération des suies** : des amas en structures chaînées, caractéristiques des suies dont la taille peut atteindre de 50 à 600 nm [22], se forment par agglomération de particules primaires entre elles. Les mécanismes d'agglomération sont détaillés dans la partie suivante.



*Figure 11 : Mécanisme de formation des matières carbonneuses lors de la combustion du carburant dans la chambre de combustion des moteurs Diesel – adapté de [23]*

Les suies sont évacuées de la chambre de combustion, principalement vers l'échappement. Cependant, une partie des suies passe dans l'huile du moteur soit en se déposant sur la chemise du cylindre et en se mélangeant avec l'huile destinée à la lubrification du piston, soit via le passage d'une faible quantité des gaz d'échappement entre les segments et la chemise du piston. Les suies présentes dans l'huile forment ensuite des agrégats plus ou moins compacts pouvant occuper un volume important. E. Varenne [24], a évalué une fraction volumique de suies dans l'huile usée de 0,17. Cette valeur élevée explique pourquoi l'influence des suies sur la rhéologie de l'huile usée est beaucoup plus importante que leur teneur en masse (quelques pourcents) ne le laisse prévoir.

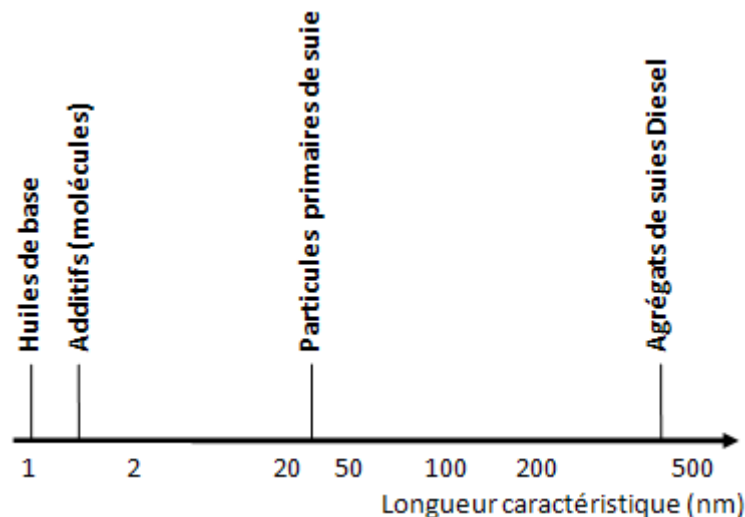
### 1.3. Le lubrifiant vieilli : un système colloïdal complexe

#### 1.3.1. Les lubrifiants moteur en tant que suspensions colloïdales

Les lubrifiants formulés vieillis sont des milieux complexes comprenant de nombreux constituants : huiles de base, additifs, particules solides de suies, etc. Ces lubrifiants forment alors des suspensions qui peuvent être décrites comme des milieux colloïdaux. Un milieu colloïdal peut être défini comme un système composé d'une phase discontinue ayant une taille

comprise entre 1 nm et 10  $\mu\text{m}$  finement dispersée dans une seconde phase continue homogène (ici l'huile).

Sur la Figure 12, on compare les tailles des divers constituants d'un lubrifiant vieilli contenant des particules solides de suies. On remarque que les particules primaires ont une taille de 5 à 10 fois supérieure à celle des additifs, mais ces particules primaires ne sont pas présentes isolément dans la suspension. En revanche, les suies telles qu'elles se présentent dans l'huile sont de taille très supérieure aux constituants de la phase liquide (environ 100 fois) ce qui permet d'assimiler l'huile à une phase continue.



*Figure 12 : Distribution de tailles caractéristiques des divers constituants d'un lubrifiant vieilli contenant des particules solides de suies. Les suies (phase solide) ont une taille supérieure d'un facteur 100 à tous les autres éléments de la phase liquide – adapté de [25]*

Cette distribution de tailles caractéristiques des divers constituants justifie la répartition choisie pour distinguer la phase liquide de la phase solide. En particulier, la phase liquide est considérée comme un continuum vis-à-vis des particules.

- ✓ **Phase liquide :** la phase liquide est donc un mélange constitué principalement par les molécules de l'huile de base et minoritairement par l'ensemble des additifs,
- ✓ **Phase solide :** la phase solide considérée ici est constituée essentiellement par les suies qui forment, par agglomération de particules primaires entre elles, des amas en structures chaînées dont la taille peut atteindre de 50 à 600 nm. Des additifs peuvent éventuellement s'adsorber sur ces amas.

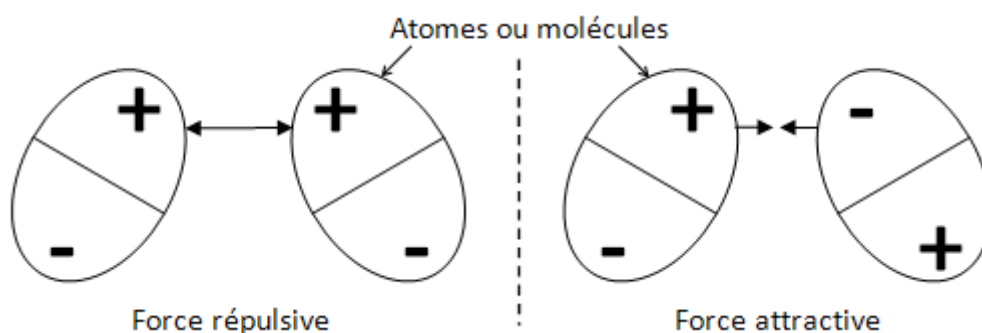
La présence de nombreuses particules dans le lubrifiant vieilli favorise de nouveaux phénomènes, comme la collision et le collage des particules. Ces processus sont répétitifs et peuvent conduire à des agrégats de forte taille par rapport aux particules initiales. L'organisation des systèmes colloïdaux dépend de l'équilibre entre plusieurs forces existant entre les particules et le solvant ainsi que des forces diffusionnelles et hydrodynamiques. Les interactions de

surface phase solide\phase solide et phase solide\phase liquide jouent un rôle important dans l'étude des systèmes colloïdaux notamment sur leur comportement rhéologique et leur stabilisation. L'ensemble de ces forces est rappelée dans les parties qui suivent.

### 1.3.2. Les forces interparticulaires dans les milieux dispersés

Les forces d'interaction entre particules sont décrites dans le cadre de la théorie DLVO (Derjaguin, Landau, Verwey et Overbeek) et jouent un rôle fondamental dans les milieux dispersés. Les forces de Van der Waals, les forces électrostatiques (double couche électrique) et les interactions stériques sont les trois principales forces interparticulaires. Les particules étant colloïdales, la force de gravité est négligeable par rapport aux autres forces mises en jeu.

**Les forces de Van der Waals** sont des forces toujours présentes entre atomes ou molécules et font partie des interactions colloïdales les plus importantes. Elles proviennent d'interactions dipolaires de faible intensité. Au niveau macroscopique, ces forces sont toujours attractives entre solides de même nature et leur intensité décroît quand la distance de séparation augmente [26].



*Figure 13 : Schématisation du moment dipolaire instantané - adapté de [26]*

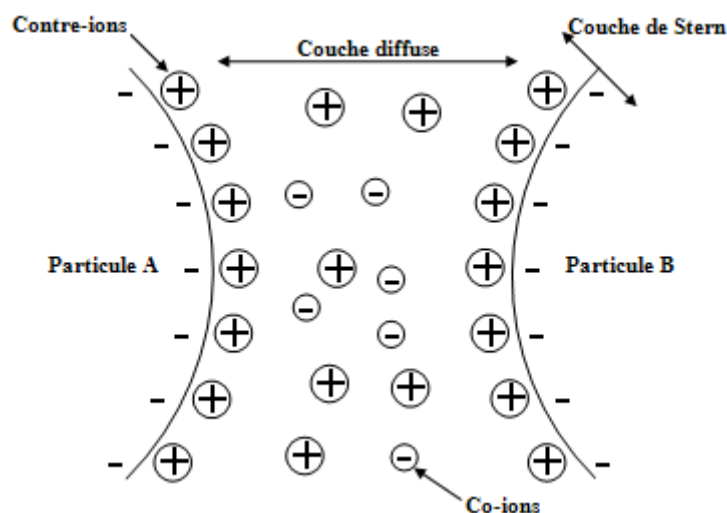
Le calcul réalisé par Hamaker (1937) pour deux sphères solides identiques de rayon  $b$  et distantes de  $R$  permet d'exprimer l'énergie due aux forces de Van der Waals :

$$U_{Van\ der\ Waals} = -\frac{A_h}{6} \left[ \frac{2b^2}{R^2 - 4b^2} + \frac{2b^2}{R^2} + \ln\left(\frac{R^2 - 4b^2}{R^2}\right) \right] \quad (10)$$

La constante de Hamaker dépend de la polarisabilité des particules et des molécules et vaut typiquement de  $10^{-19}$  à  $10^{-21}$  J. Dans le cas de particules chargées, les interactions de Van der Waals sont faibles par rapport aux interactions électrostatiques.

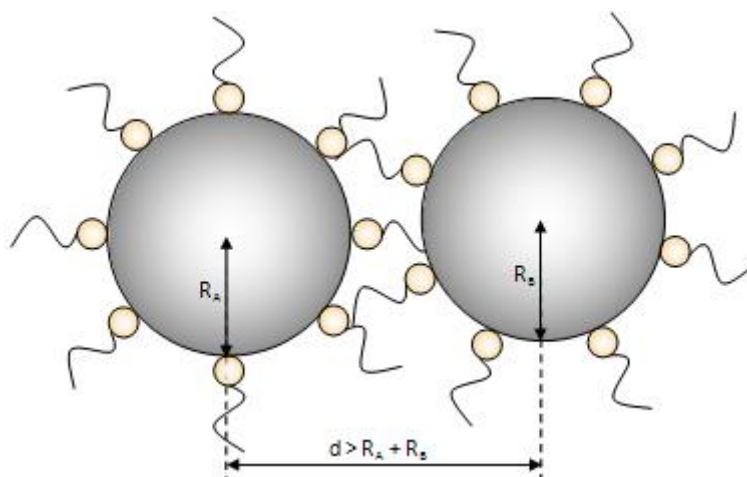
**Les forces électrostatiques** sont des forces répulsives engendrées par les charges de surface que portent les particules colloïdales et qui modifient la distribution ionique du milieu environnant. Des phases différentes ont souvent des affinités électrostatiques différentes ce qui provoque la formation d'une double couche électrique à l'interface constituée de contre-ions (c'est-à-dire des

ions de charges opposées aux charges de surface de la particule) adsorbés en surface. On appelle couche de Stern la couche compacte formée par les charges de surface et les contre-ions. L'épaisseur de la couche de Stern, de l'ordre de l'Angström, est due aux interactions électrostatiques [12]. Les co-ions (c'est-à-dire des ions de même charge que les charges de surface de la particule) sont alors repoussés plus loin dans la suspension (Figure 14). Une fois les particules recouvertes par les contre-ions, celles-ci se repoussent ce qui limite les contacts interparticulaires. Ce mécanisme de répulsion est d'origine entropique.



*Figure 14 : Schéma de la double couche électrique formée entre deux particules chargées - d'après [27]*

**Les interactions stériques** sont des forces répulsives basées sur un effet entropique dû à la présence de molécules à la surface des particules empêchant le contact direct entre les particules. Ce sont des interactions à courte distance, de l'ordre de la taille des particules de solvant, qui permettent de disperser les particules (Figure 15).



*Figure 15 : Le principe de la stabilisation stérique est basé sur l'encombrement de molécules adsorbées en surface qui empêche le contact direct entre les particules - adapté de [27]*

### 1.3.3. Stabilité statique des suspensions colloïdales

La stabilité statique des lubrifiants moteur vieilliss en tant que suspensions colloïdales permet de limiter l'agrégation des particules à l'origine des modifications des propriétés rhéologiques. Cette stabilité résulte de l'équilibre entre potentiel attractif de Van der Waals, qui promeut la coagulation, et potentiel répulsif des forces électrostatiques et des interactions stériques, qui stabilise les dispersions.

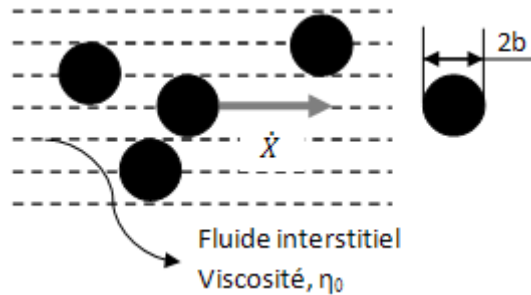
La théorie DLVO décrit cet équilibre. Un certain nombre de paramètres physico-chimiques permettent de modifier les interactions entre particules et donc de contrôler l'agrégation : pH, force ionique, nature du solvant, additifs. Dans le cas d'une huile moteur, la stabilisation est majoritairement d'origine stérique.

### 1.3.4. Diffusion de particules colloïdales dans un fluide visqueux : impact sur la rhéologie

La diffusion de particules colloïdales dans un fluide visqueux (Figure 16) est un phénomène de transport dû à des effets osmotiques liés aux variations de la concentration locale de la phase dispersée. Il en résulte un flux de particules,  $J$ , donné par la loi de Fick [28] :

$$J = -D_t * \frac{\partial c}{\partial x} \quad (11)$$

où  $D_t$  est le coefficient de diffusion translationnel de la particule,  $x$  la direction du déplacement, et  $\frac{\partial c}{\partial x}$  est le gradient de concentration locale.



*Figure 16 : Représentation schématique de la diffusion de particules colloïdales dans un fluide visqueux - adapté de [29]*

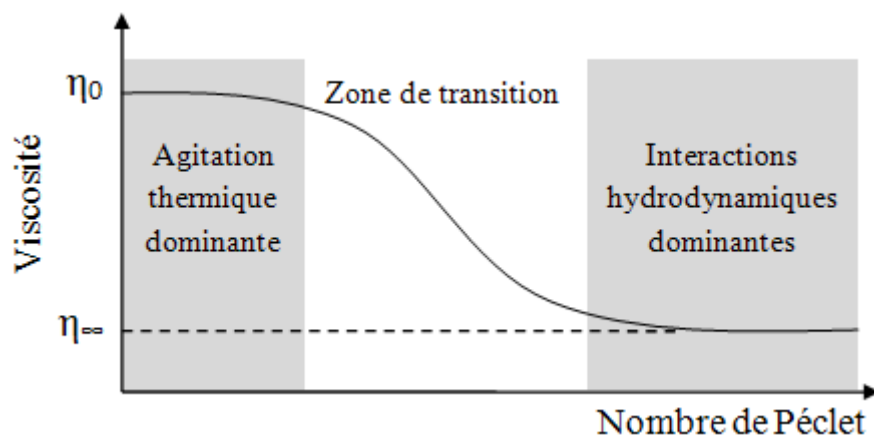
Si  $\dot{X}$  et  $V$  désignent respectivement la vitesse instantanée et le volume effectif de la particule,  $J$  s'écrit simplement :

$$J = \frac{\dot{X}}{V} \quad (12)$$



Lorsque la particule voyage d'une région à forte concentration vers une région de faible concentration, la force due à la pression osmotique est équilibrée par la force de traînée,  $f$ , donnée par la loi de Stokes [30] :  $f = -6\pi\eta_0 b\dot{X}$ , où  $\eta_0$  est la viscosité du fluide suspendant et  $b$  le rayon effectif de la particule.

Grâce à la loi de Einstein, on montre que  $D_t = \frac{kT}{6\pi\eta_0 b}$ . Ce coefficient de diffusion est associé à un temps,  $t_b$ , caractéristique du mouvement Brownien :  $t_b = \frac{b^2}{D_t} = \frac{6\pi\eta_0 b^3}{kT}$ . Celui-ci peut être comparé au temps caractéristique de l'écoulement  $t_h = \frac{1}{\dot{\gamma}}$ , en utilisant le nombre de Péclet,  $P_e = t_b * \dot{\gamma}$ . Aux faibles vitesses de déformation ( $P_e \ll 1$ ), l'agitation thermique diminue les interactions hydrodynamiques. Dans ce régime, les particules peuvent diffuser d'une couche fluide à une autre, sous l'action du mouvement Brownien, ce qui contribue à augmenter la viscosité (Figure 17). Aux fortes vitesses de déformation, ( $P_e \gg 1$ ), l'énergie thermique permet de faire migrer les particules dans l'épaisseur du fluide et le cisaillement est dû principalement dans la phase continue. La viscosité de la suspension colloïdale tend alors vers celle du solvant (Figure 17).



*Figure 17 : Représentation schématique de la viscosité en fonction du nombre de Péclet - adapté de [31]. Pour les faibles vitesses d'écoulement du fluide ( $P_e \ll 1$ ), l'agitation thermique domine les interactions hydrodynamiques et la viscosité du fluide n'est pas modifiée. Pour les fortes vitesses d'écoulement du fluide ( $P_e \gg 1$ ), les interactions hydrodynamiques dominent l'agitation thermique et la viscosité est modifiée : un comportement rhéofluidifiant apparaît*

Cette analyse physique simple montre qu'une dispersion colloïdale se comporte intrinsèquement comme un fluide non-Newtonien rhéofluidifiant.

## 1.4. Mécanismes de lubrification en présence de suies

### 1.4.1. Régimes de lubrification

Stribeck, dans ses travaux parus en 1902 [32], mesure l'évolution du coefficient de frottement  $\mu$  en fonction de grandeurs globales telles que la charge appliquée (qui définit la pression de contact), la vitesse de glissement et la viscosité du lubrifiant. L'ensemble de ces grandeurs peuvent être regroupées en un paramètre appelé nombre de Hersey défini par :

$$H_s = \frac{\eta U_E}{P} \quad (13)$$

avec :

$H_s$  est le nombre de Hersey [m],

$\eta$  est la viscosité dynamique [Pa.s],

$U_E$  est la vitesse d'entraînement moyenne [m.s<sup>-1</sup>],

$P$  est la pression de contact moyenne [Pa].

La courbe portant son nom suit l'allure schématique présentée à la Figure 18 dans des conditions de suralimentation en lubrifiant. Dans une représentation logarithmique, cette courbe se divise en trois zones clairement distinctes révélant ainsi les trois principaux régimes de lubrification qui dépendent de l'épaisseur relative du film de lubrifiant,  $h_c$ , par rapport à la rugosité composite des surfaces, quantifiée par  $\sigma$ .

La rugosité est un paramètre influant sur le comportement tribologique, la distribution du film d'huile et la transition entre les régimes de lubrification [33], [34]. Il est ainsi intéressant d'associer les régimes de lubrification à une gamme de valeurs du paramètre  $\lambda = \frac{h_c}{\sigma}$ , proposé par Tallian [3].

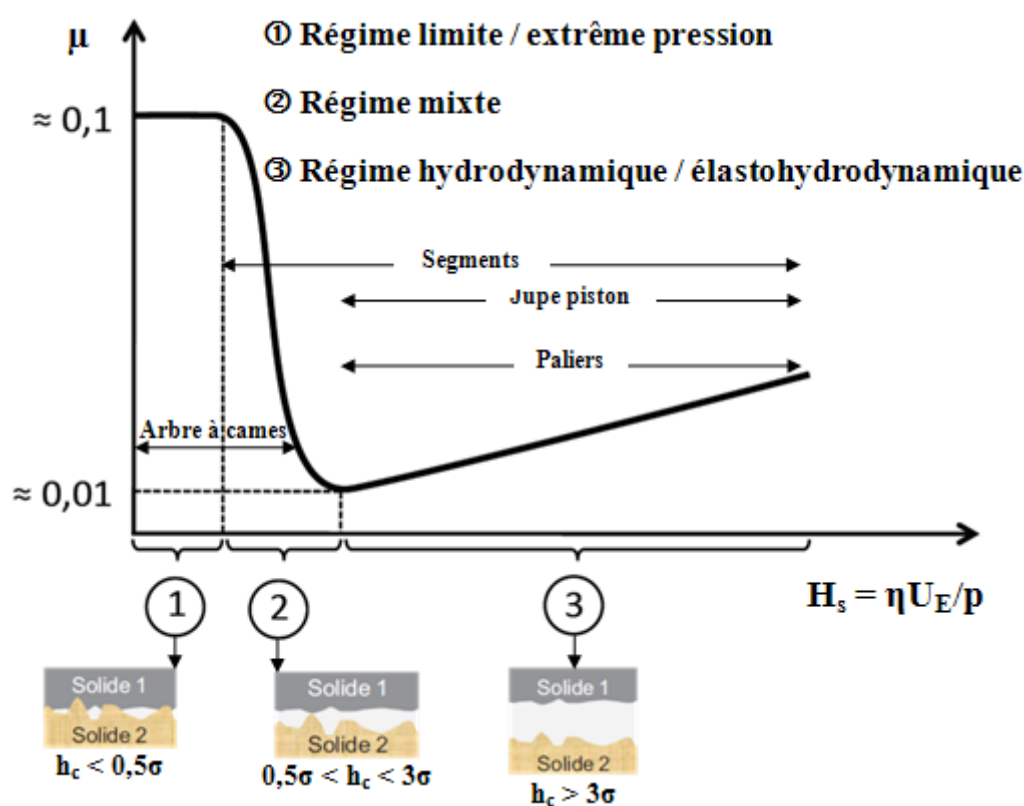
À partir des 3 zones de la courbe, on distingue ainsi les régimes suivants :

① **Régime Limite / Extrême Pression** : aux fortes pressions et faibles vitesses d'entraînement, le rapport entre l'épaisseur de film lubrifiant  $h_c$ , et l'écart-type de la rugosité  $\sigma$  devient très faible ( $\lambda < 0,5$ ). La charge normale transmise par l'interface est principalement supportée par les aspérités présentes à la surface des deux solides en contact et la portance hydrodynamique n'existe pratiquement plus. Si la pression est faible ( $P < 50$  MPa), le régime de lubrification est dit limite et la séparation des solides peut être assurée par l'adsorption en surface de certaines espèces chimiques contenues dans le lubrifiant. Si la pression est plus forte (parfois jusqu'à 3GPa), on parle alors de régime extrême pression. Dans ce régime, les valeurs du coefficient de frottement  $\mu$  sont élevées et contrôlées par les propriétés de surface des solides en contact ainsi que par les propriétés physico-chimiques des molécules adsorbées en surface. La viscosité du lubrifiant n'influe pratiquement pas sur le coefficient de frottement  $\mu$ , qui est indépendant en moyenne de la vitesse d'entraînement  $U_E$ .

② **Régime Mixte** : Dans ce régime, de faibles variations des conditions tribologiques induisent une évolution importante du coefficient de frottement. Ainsi, une diminution importante de la pression ou une augmentation de la vitesse d'entraînement se traduit par une chute brutale du coefficient de frottement. La portance hydrodynamique du lubrifiant augmente progressivement et tend à séparer les surfaces : l'interface atteint alors le régime mixte

( $0,5 < \lambda < 3$ ). Dans ce régime, la charge appliquée est supportée à la fois par le film de lubrifiant et par les aspérités partiellement et transitoirement en contact.

③ **Régime HydroDynamique / ElastoHydroDynamique** : Le film lubrifiant parvient à séparer totalement les surfaces ( $\lambda > 3$ ). Les forces de frottement, relativement faibles, sont déterminées uniquement par les propriétés visqueuses du lubrifiant confiné et augmentent avec la vitesse d'entraînement. On parle alors de frottement visqueux. Si la déformation élastique des solides reste faible, ( $P < 100$  MPa, pour des surfaces métalliques), la lubrification est dite hydrodynamique. Si les surfaces des solides sont déformées élastiquement, et si la pression de contact est élevée ( $100 \text{ MPa} < P < 2 \text{ GPa}$ ), la lubrification est dite élastohydrodynamique. Malgré une déformation élastique des surfaces antagonistes grande ( $\approx 10 \text{ } \mu\text{m}$ ) par rapport à l'épaisseur de film d'huile ( $\approx 0,1 \text{ } \mu\text{m}$ ), et grâce aux effets piézo-visqueux, la séparation complète des surfaces est rendue possible par la génération d'une forte pression hydrodynamique dans le film mince de lubrifiant résultant de la conservation du débit de lubrifiant.



*Figure 18 : Allure typique d'une courbe de Stribeck dans une représentation logarithmique de l'évolution du coefficient de frottement en fonction du nombre de Hersey. Celle-ci met en évidence les 3 régimes de lubrification : le régime limite, le régime mixte et le régime hydrodynamique. Le passage d'un régime à un autre dépend, d'une part, des conditions de vitesse, de pression ainsi que de la viscosité du lubrifiant qui déterminent l'épaisseur de film entre les deux surfaces antagonistes, et d'autre part, de la rugosité des surfaces. Les arbres à cames qui sont dimensionnés pour travailler dans un régime de lubrification mixte/limite dans lequel les surfaces sont partiellement séparées par un film lubrifiant. Les segments sont soumis à des contacts en régime de lubrification mixte/hydrodynamique et les paliers sont soumis à des contacts en régime de lubrification hydrodynamique dans lequel les surfaces sont totalement séparées par un film lubrifiant*

Ainsi, le fonctionnement d'un contact mécanique donné peut l'amener à traverser plusieurs de ces régimes de lubrification, en fonction de l'évolution des sollicitations tribologiques imposées, mais aussi de son alimentation en lubrifiant [35]. C'est le cas notamment des arbres à cames qui sont dimensionnés pour travailler dans un régime de lubrification mixte/limite dans lequel les surfaces sont partiellement séparées par un film lubrifiant. Les segments, eux, sont soumis à des contacts en régime de lubrification mixte/hydrodynamique. Enfin, les paliers sont soumis à des contacts en régime de lubrification hydrodynamique dans lequel les surfaces sont totalement séparées par un film lubrifiant. Les régimes de fonctionnement de ces différentes parties du moteur sont indiqués sur la Figure 18.

#### **1.4.2. Influence de la présence des suies**

Dans le cas du fonctionnement d'un moteur Diesel, les particules solides de suies sont présentes dans les lubrifiants moteur et sont susceptibles de s'agréger sous l'effet de la température, du cisaillement et de l'écoulement. La formation d'agrégats peut modifier considérablement la viscosité du lubrifiant et les mécanismes de lubrification sont alors modifiés.

##### **1.4.2.1. Phénomènes d'agrégation**

Le mouvement Brownien et l'application d'un écoulement extérieur conduisent à des collisions au cours desquelles les particules peuvent entrer en contact et/ou s'agréger en fonction de l'intensité de leurs interactions [36]. Il est possible de considérer l'agrégation comme un phénomène irréversible ou réversible selon qu'un choc entre particules soit efficace ou non. Un choc efficace se produit si les forces interparticulaires sont supérieures aux forces hydrodynamiques. Si tout choc entre deux particules est efficace, alors il donne lieu à la formation d'une liaison interparticulaire infiniment forte et à la formation d'agrégats de taille supérieure, l'agrégation est considérée comme irréversible. Si un choc entre particules n'est pas totalement efficace, alors la liaison interparticulaire peut être rompue. La formation d'agrégats ne se produit pas au-delà d'une taille critique car l'agrégat finit par se rompre ou se restructurer et l'agrégation est considérée comme réversible.

À l'échelle microscopique, c'est l'équilibre entre les forces de cohésion des agrégats et les forces hydrodynamiques qui gouverne les phénomènes d'agrégation. À l'échelle macroscopique, ces mécanismes se traduisent par une distribution en taille des particules à l'équilibre et une morphologie des agrégats. Cette approche des phénomènes d'agrégation dans les suspensions colloïdales est assez réaliste car elle conduit à la formation d'agrégats de taille limite [36].

L'agrégation sous écoulement dans les suspensions colloïdales peut conduire à un changement de la distribution granulométrique. Il est possible de caractériser les agrégats obtenus et de comprendre les cinétiques d'agrégation mises en jeu. Deux cas limites sont souvent considérés :

- ✓ L'agrégation péricinétique, causée par le mouvement brownien,
- ✓ L'agrégation orthocinétique, causée par l'écoulement de la suspension.

### Agrégation péricinétique

Les premières études portant sur la cinétique de l'agrégation péricinétique ont été menées par Smoluchowski [37]. Selon lui, la fréquence à laquelle se produisent les collisions contrôle la cinétique d'agrégation. Les petites particules en suspension peuvent être considérées comme subissant un mouvement continu aléatoire dû au mouvement Brownien. Ces particules ne subissent pas un nombre suffisamment important de collisions pour former rapidement de très gros agrégats, particulièrement en milieu dilué.

Smoluchowski a écrit le taux de collision dû au mouvement Brownien entre deux particules  $i$  et  $j$  de rayon respectif  $b_i$  et  $b_j$  comme étant le débit de particules  $j$  qui diffusent à l'intérieur de la sphère de rayon  $b_i + b_j$  autour de la particule  $i$ . En exprimant le flux de particules traversant la sphère de rayon  $b_i + b_j$  et en l'intégrant sur toute la surface balayée, le taux de collision est donné par l'expression suivante :

$$\beta_{i,j}^{brownien} = \frac{2kT}{3\eta}(b_i + b_j)\left(\frac{1}{b_i} + \frac{1}{b_j}\right) \quad (14)$$

avec  $k = 1,38.10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température et  $\eta$  la viscosité de la suspension.

### Agrégation orthocinétique

L'agrégation orthocinétique se définit par le transport de particules dû au mouvement du fluide (lorsque la suspension est soumise à une certaine forme de cisaillement, soit par agitation, soit par écoulement) ce qui peut significativement augmenter le taux de collision entre les particules et donc conduire à la formation d'agrégats.

En ne considérant que le cas d'un cisaillement laminaire uniforme, Smoluchowski écrit le taux de collision dû au mouvement du fluide entre deux particules  $i$  et  $j$  :

$$\beta_{i,j}^{laminaire} = \frac{4}{6}G(b_i + b_j)^3 \quad (15)$$

avec  $G$  le gradient de vitesse.

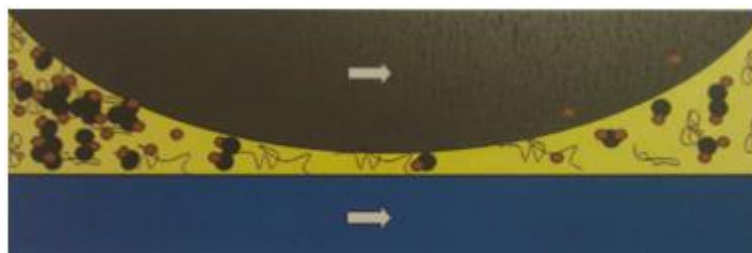
#### **1.4.2.2. Modification des régimes de lubrification en conditions stationnaires**

Un grand nombre d'articles ont rapporté des études expérimentales et numériques sur le comportement des particules dans des dispersions pour des contacts lubrifiés. Dans tous les cas, le rapport taille des particules/épaisseur de film est un paramètre prépondérant dans l'entrée ou non des agrégats dans le contact lubrifié [38], [39] et [40].

Pour un rapport taille de particules/épaisseur de lubrifiant dans le contact inférieur à 1, les particules de suie pénètrent au sein du contact du fait de l'entraînement et du débit de

lubrifiant. Les particules vont ainsi pouvoir interagir avec les surfaces et s'y adsorber. Ce phénomène est accentué par la présence de rugosités sur les surfaces et/ou celle d'agents dispersants. L'action du cisaillement, de la pression et de la température peut se traduire par la formation d'un film limite, constitué de particules, déformées plastiquement ou non. Enfin, la présence de ces particules de suie dans le lubrifiant entraîne une consommation importante des additifs détergents et dispersants [41] et réduit de manière drastique la capacité du lubrifiant à former un film tribochimique sur les surfaces. Une des conséquences directes est l'apparition prématurée d'usure abrasive des corps en contact [24].

Pour un rapport taille de particules/épaisseur de lubrifiant dans le contact supérieur à 1, l'analyse de Spikes [38] des lignes d'écoulement à l'entrée du contact souligne l'existence de deux zones : une zone, proche des surfaces, où le flux passe dans le contact (dite zone de flux) et une zone où le flux est éjecté hors du contact (dite zone de reflux). Les conditions cinématiques appliquées influent directement sur la position de ces zones relativement au contact. Ceci, associé à la concentration des particules, pilote les mécanismes d'entrée des particules. De plus, sous l'action du cisaillement dans la zone du convergent, des agrégats de suie peuvent se former, ce qui est susceptible de modifier l'alimentation du contact, et par conséquent, les mécanismes de formation du film. L'accumulation des particules et des agrégats dans le convergent peut aussi introduire un effet de filtration [13], [24]. En effet, d'après C.Meunier, le convergent du contact, pilotant les épaisseurs de film, s'apparente à un filtre moléculaire sélectionnant les particules par leur taille. Cette sélection empêche les particules de pénétrer dans l'interface et entraîne une diminution des épaisseurs de film (Figure 19).



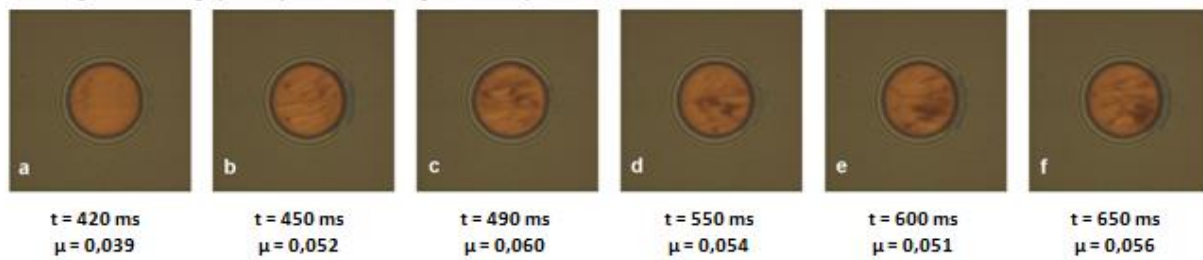
*Figure 19 : Modèle proposé par C. Meunier illustrant l'hypothèse d'un filtre moléculaire qui bloque certaines particules dans le convergent d'un contact lubrifié en fonction de leurs tailles respectives*

Enfin, ces phénomènes d'agrégation dans le convergent impactent la rhéologie du lubrifiant : ainsi la viscosité dans le convergent, vue par le contact, diffère de la viscosité en volume, ce qui implique une modification directe de l'épaisseur de film formée au sein du contact.

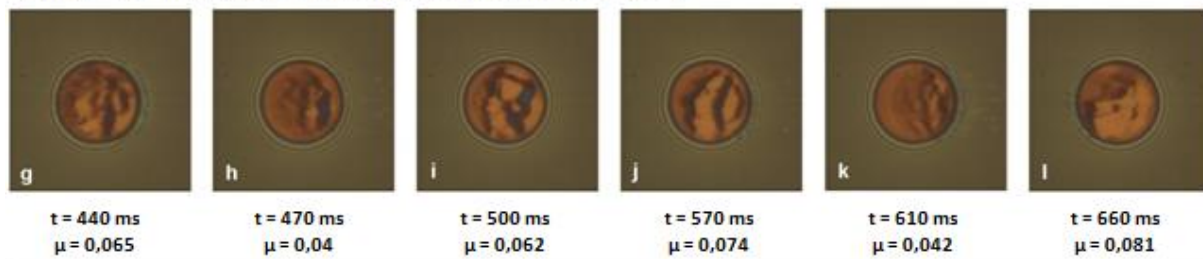
#### **1.4.2.3. Modification des régimes de lubrification en conditions transitoires**

La cinématique particulière du contact Segments-Chemise impose des régimes transitoires, notamment au niveau des points morts lorsque la vitesse s'annule brutalement. Mazuyer et Meunier [13] ont montré que les conditions de cisaillement produites par des cinématiques alternatives pouvaient donner naissance à des phénomènes de lubrification transitoires, phénomènes largement amplifiés en présence de particules de suie (Figure 20).

### *Lubrifiant neuf (complètement formulé)*



### *Lubrifiant vieilli (contenant des particules de suies)*



**Figure 20 :** *Corrélation des niveaux de frottement avec la visualisation du film lubrifiant dans l'interface en régime transitoire entre un lubrifiant neuf et un lubrifiant vieilli, d'après [13]*

Pour le lubrifiant neuf, le frottement demeure globalement constant pour une épaisseur relativement homogène au cours du cycle. Pour le lubrifiant vieilli, contenant des suies, une hétérogénéité marquée en épaisseur de film lubrifiant dans le contact peut être associée à des fluctuations importantes de la valeur du frottement. Contrairement au lubrifiant neuf, le lubrifiant vieilli ne semble pas capable de conserver une cohésion dans les phases d'instabilité sous l'effet du cisaillement.

## **1.5. Conclusions**

Certains organes des moteurs Diesel nécessitent d'être lubrifiés pour assurer leur bon fonctionnement. Les lubrifiants se composent de deux éléments fondamentaux : un mélange de bases, auquel une quantité d'additifs est ajoutée. Les principales fonctions d'un lubrifiant sont de réduire les pertes mécaniques par frottement, de protéger les surfaces et d'assurer des performances optimales sur une durée maximale. Lorsqu'il est neuf, un lubrifiant peut répondre à tous ces critères. En revanche, au cours de son fonctionnement dans le moteur Diesel, le lubrifiant se dégrade et ses performances tribologiques ne peuvent plus être garanties. La zone principale de dégradation se situe au niveau de la zone SPC. Dans cette zone, la source principale de dégradation est la contamination du lubrifiant par les suies qui proviennent de la combustion incomplète du carburant.

Une fois vieilli, le lubrifiant peut être décrit comme un milieu colloïdal. L'organisation des particules en suspensions et leur distribution de taille dépendent alors de la nature des forces d'interaction (interparticulaires, Browniennes et hydrodynamiques) qui influent sur le comportement rhéologique du lubrifiant. La stabilité statique du milieu colloïdal dépend de l'équilibre entre ces interactions et peut être contrôlée en modifiant l'interaction entre particules. Elle résulte principalement d'effets stériques pour les lubrifiants. Sous l'effet de l'agitation thermique, ou d'un écoulement, les particules colloïdales contenues dans le fluide

visqueux diffusent. Ce phénomène de transport irréversible explique le comportement rhéofluidifiant d'une suspension colloïdale.

Les phénomènes d'agrégation et de rupture des agrégats sous écoulement résultent d'effets physico-chimiques, hydrodynamiques et morphologiques. Assimiler le lubrifiant vieilli à un système colloïdal permet de comprendre les mécanismes d'agrégation des particules de suie sur les mécanismes de lubrification. En régime stationnaire, les particules unitaires ou organisées en chapelets peuvent s'agglomérer dans le convergent et modifier l'épaisseur du film lubrifiant. En régime transitoire, on observe une corrélation entre frottement, film lubrifiant dans la zone de haute pression et rhéologie des lubrifiants dégradés.



# Chapitre 2

## Les revêtements DLC

### Sommaire

2.1.	<i>Introduction</i> .....	49
2.2.	<i>Composition et microstructure des dépôts carbone</i> .....	49
2.2.1.	Un élément chimique fondamental : le carbone .....	49
2.2.2.	Cristallographie du carbone.....	51
2.2.3.	Propriétés des couches minces de DLC.....	53
2.3.	<i>Les procédés de dépôt DLC</i> .....	55
2.3.1.	Méthodes physiques (PVD : Physical Vapor Deposition) .....	56
2.3.2.	Méthodes chimiques (CVD : Chemical Vapor Deposition) .....	58
2.3.3.	Mécanismes de croissance des couches minces.....	61
2.3.4.	Adhérence des dépôts DLC .....	65
2.3.5.	Élaboration d'un multicouche à base de carbone .....	65
2.4.	<i>Caractérisation des dépôts DLC réalisés</i> .....	68
2.4.1.	Mesure de l'épaisseur.....	68
2.4.2.	Mesure des propriétés optiques.....	69
2.4.3.	Mesure de l'adhérence .....	70
2.4.4.	Mesure de la dureté et du module d'élasticité.....	71
2.4.5.	Mesure de la topographie de surface .....	72
2.4.6.	Récapitulatif des caractéristiques des dépôts réalisés .....	74
2.5.	<i>Conclusions</i> .....	75

## 2.1. Introduction

Les traitements de surface dédiés à la lutte contre les frottements et l'usure sont depuis plus de 20 ans axés sur les dépôts à base de carbone. Les couches minces de type Diamond-Like Carbon (DLC), du fait de leurs caractéristiques exceptionnelles en termes de dureté importante et de faible frottement sec, représentent une alternative économique intéressante à des technologies de revêtements qui tendent à diminuer le coefficient de frottement pour des pièces de grande taille et/ou à géométries complexes.

Ce chapitre a pour objectif de présenter et caractériser les dépôts DLC développés et utilisés dans le cadre de cette thèse. La première partie de ce chapitre est consacrée à la description de la composition et de la microstructure des dépôts à base de carbone. Nous décrirons dans la deuxième partie les principales techniques d'élaboration de ces couches puis nous les appliquerons à la fabrication d'un multicouche à base de carbone sur les échantillons utilisés lors des expériences tribologiques (des billes et des disques). Enfin, les dépôts DLC réalisés seront caractérisés tant d'un point de vue morphologique, optique que mécanique.

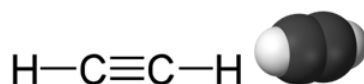
## 2.2. Composition et microstructure des dépôts carbone

### 2.2.1. Un élément chimique fondamental : le carbone

L'atome de carbone contient 6 protons et 6 neutrons dans sa forme la plus stable et sa configuration électronique, dans son état fondamental, est  $1s^2 2s^2 2p^2$ . Les orbitales atomiques de basse énergie,  $1s$  et  $2s$ , contiennent chacune 2 électrons et sont complètement saturées, donc stables d'un point de vue énergétique. Sur les 6 électrons que possède l'atome de carbone, il reste deux électrons de valence qui se répartissent aléatoirement sur les trois orbitales atomiques  $2p$  ( $p_x$ ,  $p_y$ ,  $p_z$ ) qui ne sont pas saturées. Lors d'une liaison chimique, les électrons des couches supérieures  $2s$  et  $2p$  se répartissent sur des orbitales atomiques hybrides, appelées «  $sp$  ». Celles-ci se combinent entre elles pour former des liaisons chimiques plus stables. Ainsi activé, le carbone possède 4 électrons libres qui appartiennent à des orbitales de formes différentes ( $2s$  et  $2p$ ) et peut donc former 4 liaisons covalentes avec ses atomes voisins. L'atome de carbone, tétravalent, peut donc adopter trois configurations de liaison :  $sp^1$ ,  $sp^2$  et  $sp^3$ .

#### Hybridation $sp^1$ :

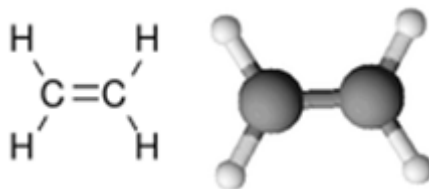
L'hybridation la plus simple est l'hybridation linéaire à 1 dimension notée  $sp^1$  (Figure 21). L'atome de carbone peut se lier avec 2 atomes voisins. Ce type d'hybridation se rencontre dans les composés possédant une triple liaison entre les atomes de carbone. L'acétylène ( $C_2H_2$ ) représente un exemple d'hybridation  $sp^1$ .



*Figure 21 : Exemple d'hybridation linéaire  $sp^1$  (1 dimension) : la structure tridimensionnelle de l'acétylène ( $C_2H_2$ )*

### Hybridation $sp^2$ :

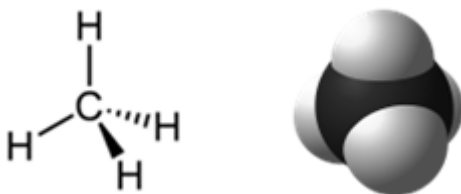
Le carbone peut aussi se lier avec seulement trois de ses atomes plus proches voisins. Il est dans ce cas trivalent et il s'agit de l'hybridation  $sp^2$  à 2 dimensions. Pour y parvenir, l'orbitale  $2s$  fusionne avec deux orbitales  $2p$  pour former trois orbitales hybrides équivalentes, coplanaires, formant entre-elles un angle de  $120^\circ$ . Il reste une orbitale  $2p$  non hybridée perpendiculaire au plan des orbitales hybrides (Figure 22). Cette hybridation se rencontre dans les composés possédant des doubles liaisons entre les atomes de carbone. L'éthylène ( $C_2H_4$ ) représente un exemple d'hybridation  $sp^2$ .



*Figure 22 : Exemple d'hybridation plane  $sp^2$  (2 dimensions) : la structure tridimensionnelle de l'éthylène ( $C_2H_4$ )*

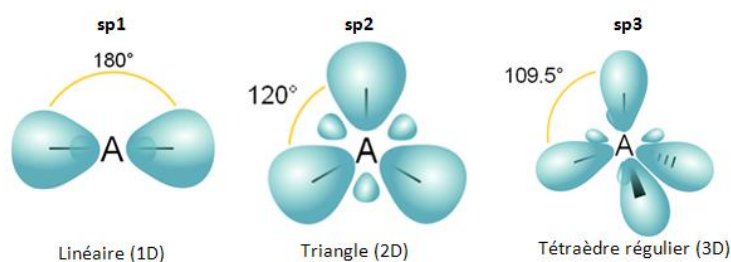
### Hybridation $sp^3$ :

Les hybridations les plus fréquentes correspondent à la formation, par combinaison des quatre orbitales d'origine, de quatre orbitales équivalentes formant entre elles des angles d'environ  $109^\circ$  orientées vers les sommets d'un tétraèdre. Ainsi, l'atome de carbone forme avec ces quatre voisins un tétraèdre avec pour centre l'atome de carbone : il s'agit de l'hybridation  $sp^3$  à 3 dimensions (Figure 23). Ce type d'hybridation se rencontre dans les composés du carbone possédant des liaisons simples. Le méthane ( $CH_4$ ) représente un exemple d'hybridation  $sp^3$ .



*Figure 23 : Exemple d'hybridation tétraédrique  $sp^3$  (3 dimensions) : la structure tridimensionnelle du méthane ( $CH_4$ )*

La Figure 24 présente les orbitales hybrides  $sp^1$ ,  $sp^2$  et  $sp^3$  dans leurs formes idéales lorsque la géométrie la plus symétrique possible est adoptée.



*Figure 24 : Forme idéale des orbitales hybrides  $sp^1$ ,  $sp^2$  et  $sp^3$  - d'après [42]*

### 2.2.2. Cristallographie du carbone

Le carbone est présent sur terre depuis la création de celle-ci et existe sous forme de sédiments, charbon, pétrole, mais également sous sa forme pure : le graphite et le diamant. Le diagramme de phase du carbone, présenté en Figure 25, indique l'état de la matière en fonction de la pression et de la température. Il est adapté d'un diagramme de Zazula [43] sur la base de Bundy [44] et Steinback [45]. Dans des conditions de pression et température ordinaires, le carbone se trouve uniquement sous la forme graphite. Les régions métastables du diagramme de phase du carbone indiquent les conditions pour lesquelles deux phases distinctes peuvent coexister.

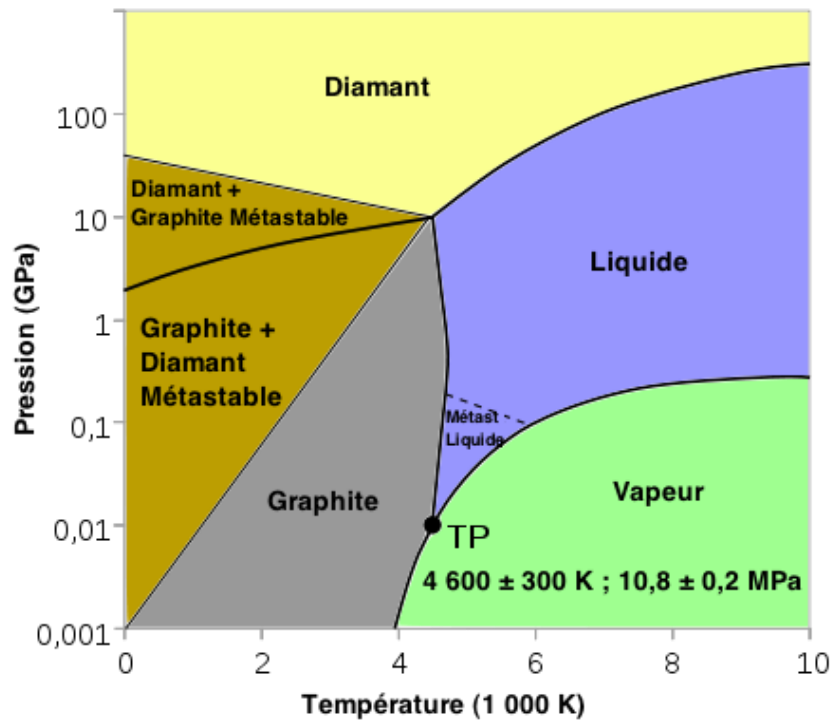
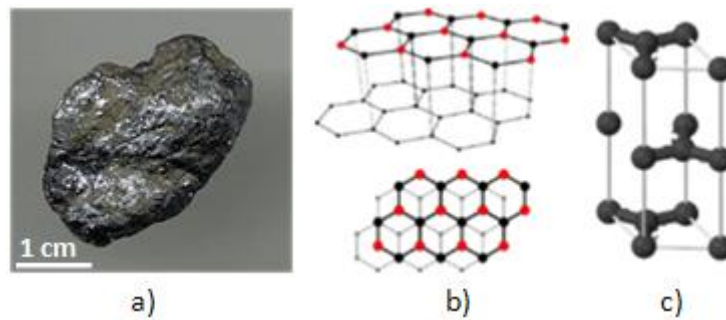


Figure 25 : Diagramme de phase des formes cristallines du carbone - d'après [43]

#### Le graphite :

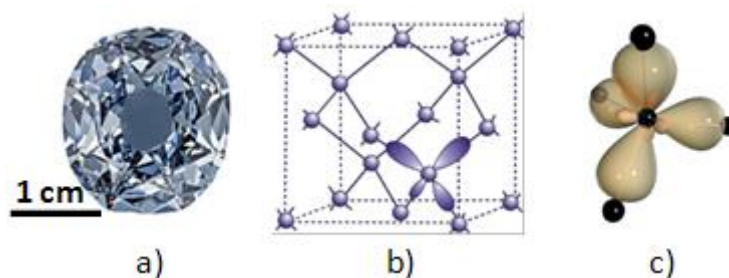
Le graphite parfait (Figure 26a) ne contient que des atomes de carbone hybridés  $sp^2$ . Il est constitué d'un empilement de structures cristallines de forme hexagonale, compactes rigides et monoplanes (Figure 26b). Dans chaque feuillet, chaque atome de carbone est fortement lié avec les trois atomes voisins (Figure 26c). Les feuillets interagissent via des liaisons de Van der Waals, ce qui explique la capacité des plans atomiques à glisser les uns par rapport aux autres et la faible dureté du graphite, inférieure à 0,4 GPa. En raison de sa structure en feuillets, toutes les propriétés physiques du graphite sont anisotropes. En particulier, la conductivité électrique est très différente dans le plan des feuillets et dans la direction perpendiculaire.



*Figure 26 : Graphite natif a), structure cristalline du graphite en vue 3D et vue de dessus b) et schéma d'une unité cellulaire c)*

### Le diamant :

Le cristal de diamant parfait (Figure 27a) ne contient que des atomes de carbone hybridés  $sp^3$  avec une structure cubique à faces centrées (Figure 27b) dans laquelle chaque atome de carbone est lié à quatre autres atomes de carbone (Figure 27c). Les liaisons constituent alors un réseau tridimensionnel aussi fortement connecté dans toutes les directions. La rupture du solide est alors très difficile. La structure atomique du diamant possède la densité atomique la plus élevée et confère au diamant des propriétés mécaniques exceptionnelles. Grâce à la résistance de ses liaisons carbone-carbone, le diamant est le matériau le plus dur (120 GPa). Il est néanmoins fragile, car sa dureté l'empêche d'absorber les chocs, il peut donc être brisé sous l'action de chocs répétés.



*Figure 27 : Diamant natif a), structure cristalline du diamant b) et schéma d'une unité cellulaire c)*

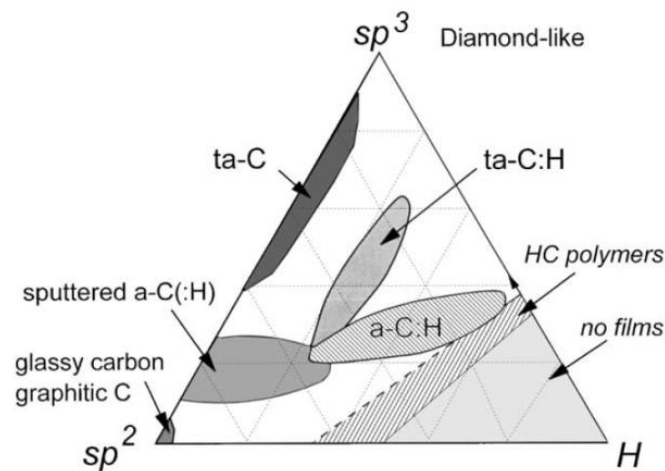
### Le DLC (Diamond-Like Carbon), entre graphite et diamant :

En plus du graphite pur (hybridation  $sp^2$ ) et du diamant pur (hybridation  $sp^3$ ), le carbone existe sous forme amorphe. La structure du carbone amorphe, a-C, est hautement désordonnée. Les formes amorphes du carbone contiennent des atomes dans les deux états d'hybridation  $sp^2$  et  $sp^3$ . Elles présentent de très nombreux défauts comme par exemple des liaisons orphelines ou des impuretés. Les revêtements DLC appartiennent à cette dernière catégorie et sont constitués d'une quantité importante d'atomes d'hydrogène, apportés par la matière de départ, un hydrocarbure comme par exemple l'acétylène ( $C_2H_2$ ).

Si le terme générique de DLC est habituellement utilisé pour désigner les couches minces de carbone, deux grandes familles existent :

- Le carbone amorphe, noté a-C, et le carbone amorphe hydrogéné, noté a-C:H, correspondent à des couches de carbone amorphe contenant une forte proportion de carbone graphitique,
- Le carbone amorphe tétraédrique, noté ta-C, et le carbone amorphe tétraédrique hydrogéné, noté ta-C:H, comportent quant à eux une proportion de liaisons  $sp^3$  supérieure à 70 % [46], [47].

Un moyen commode de représenter les différents matériaux hydrocarbonés a été initialement proposé par Jacob et Möller [48], puis repris et développé par Robertson [49] afin de mieux visualiser les différentes phases possibles à partir du graphite  $sp^2$ , du diamant  $sp^3$  et le cas échéant de l'hydrogène. Il s'agit du diagramme ternaire présenté à la Figure 28 qui s'apparente à un diagramme de phase où les zones spécifiées correspondent à des matériaux connus. Cependant, l'existence de nouveaux matériaux en dehors de ces zones n'est pas prohibée.



*Figure 28 : Diagramme ternaire proposé par Robertson [49]*

### 2.2.3. Propriétés des couches minces de DLC

Du fait de l'éventail de leur composition, les propriétés des revêtements DLC varient dans une large gamme ce qui en fait une solution attractive pour des technologies variées. Leurs propriétés morphologiques, mécaniques, chimiques, tribologiques et électriques dépendent fortement de la quantité d'hydrogène incorporé et des proportions relatives  $sp^2/sp^3$  [50], [51] et [49].

#### Propriétés mécaniques :

Selon Grill [47] et Robertson [49], la dureté des films DLC, toujours très élevée, se situe dans une gamme 5-80 GPa avec un module d'Young correspondant de 6 à 10 fois plus important. La grande dureté est étroitement liée à la proportion d'atomes de carbone hybridés  $sp^3$  : plus le taux d'hybridation est élevé, plus la dureté s'approche de celle du diamant.

Malgré ces bonnes performances mécaniques, les revêtements DLC sont caractérisés par des contraintes internes de compression élevées (plusieurs GPa), une stabilité thermique modeste

(de l'ordre de 300 °C) et une dégradation de leurs propriétés en atmosphère humide [52]. L'utilisation d'une architecture multicouche, aussi appelée dépôt de couches intermédiaires ou sous-couches d'accrochage, permet de réduire ces contraintes et de limiter les problèmes d'adhérence au niveau de l'interface film-substrat, mais elle entraîne également une baisse des caractéristiques mécaniques de la couche [53]. L'ajout d'un dopant permet d'accroître la stabilité thermique et de limiter la sensibilité à l'humidité.

### **Propriétés chimiques :**

Les revêtements DLC sont inertes chimiquement [54] et cette insensibilité des revêtements aux acides, aux bases et aux solvants permet d'apporter une protection contre la corrosion, de répondre à des problèmes d'adhésion, d'assurer la biocompatibilité [55], [56] et l'hémocompatibilité [57]. Les différentes propriétés chimiques du DLC dépendent aussi de la structure et de la teneur en hydrogène. De plus, ces couches sont atomiquement denses ce qui leur permet de réaliser une barrière de diffusion efficace [58], [59] et [60].

### **Propriétés électriques :**

Les revêtements DLC sont de bons isolants électriques avec des résistivités allant de  $10^2$  à  $10^{16}$   $\Omega\cdot\text{cm}$ . Ces propriétés dépendent fortement des conditions de dépôt [61]. Le DLC est aussi un semi-conducteur amorphe avec un gap qui varie entre 1 et 4 eV et sa nature n ou p est encore débattue [62].

### **Propriétés optiques :**

Le gap optique des revêtements DLC varie de 0,5 à 2 eV [63]. Ces valeurs confèrent aux films déposés une transparence optique dans le domaine de l'infrarouge. La quantité d'hydrogène présente dans les films influence le gap optique. Ainsi, Chhowalla et al. [64] ont démontré que les propriétés optiques des revêtements DLC étaient fortement corrélées à la fraction de carbone hybridé  $\text{sp}^3$ . Robertson met en évidence une variation linéaire de la valeur du gap optique avec le taux de carbone graphitique [49].

### **Propriétés tribologiques :**

La particularité du DLC est de présenter des propriétés tribologiques exceptionnelles en termes de réduction du coefficient de frottement et de résistance à l'usure (Table 4). Le comportement tribologique des DLC est contrôlé par une couche interfaciale formée à la surface du DLC durant les premiers cycles du frottement. Cette couche de transfert possède un effet lubrifiant à l'origine des faibles valeurs du coefficient de frottement [65]. Ce coefficient varie de 0,007 à 0,4 sous une pression résiduelle inférieure à  $10^{-4}$  Pa, et de 0,05 à 1 sous pression atmosphérique avec un taux d'hygrométrie compris entre 20 et 60 % [47]. En termes de résistance à l'usure et à l'abrasion, Allen [55] montre que le taux d'usure peut être inférieur à  $10^{-7} \text{ mm}^3\cdot\text{N}^{-1}\cdot\text{m}^{-1}$ . Ces

valeurs dépendent de la structure [66], de la rugosité [67], de la composition du matériau et de l'environnement dans lequel ont été effectués les essais de frottement [68].

Matériaux	Coefficient de frottement (tests bille/plan réalisés à sec contre un acier)	Dureté (GPa)
Bronze	0,1 – 0,15	1,5 – 3
Acier à outil	0,5 – 0,7	8
Céramique	0,4 – 0,6	15 - 25
Diamant	0,2 – 0,4	120
DLC	0,05 – 0,1	5 - 80

Faibles pertes par frottement                      Faible usure

**Table 4 :** Le DLC possède une valeur de coefficient de frottement particulièrement faible associée à une valeur de dureté très élevée, ce qui conduit à de faibles pertes par frottement et une usure limitée du matériau antagoniste - d'après [69]

L'ensemble des propriétés des couches minces de type DLC sont sommairement résumées dans la Table 5 et comparées à celles du diamant et du graphite.

	DLC	Diamant	Graphite
Résistivité ( $\Omega.cm$ )	$10^2$ à $10^{16}$	$10^{16}$	$10^2$
Gap optique (eV)	1 à 4	5,5	0
Dureté (GPa)	5 à 80	120	< 0,4
Coefficient de frottement	0,007 à 1	0,1 ( $C_d / C_d$ à sec)	0,1 ( $C_g / C_g$ à sec)
Module d'élasticité (GPa)	< 900	1000 à 1200	690
Fraction $sp^3$ (%)	0 à 80	100	0
Stabilité thermique ( $^{\circ}C$ )	300	> 700	> 700

**Table 5 :** Propriétés des revêtements DLC comparées à celles du diamant et du graphite

### 2.3. Les procédés de dépôt DLC

De manière générale, les dépôts sont formés à partir d'espèces provenant d'une source et transportées vers un substrat. Les dépôts peuvent être classés dans l'ordre croissant de taille des espèces les constituants :

- Dépôts atomistiques (atomes, ions et molécules),
- Dépôts granulaires (diamètre des particules inférieur à 100  $\mu m$ ),
- Dépôts massifs (diamètre des particules supérieur à 100  $\mu m$ ).

Les couches DLC font partie des dépôts atomistiques et sont obtenus par des techniques sous vide. Celles-ci permettent de déposer un film mince directement sur un substrat ou sur des couches d'accrochages élaborées antérieurement, dans une enceinte sous un vide partiel inférieur à  $10^{-6}$  mbar. Le terme « mince » est relatif, mais la plupart des techniques de dépôts sous vide permettent d'atteindre une épaisseur de couche allant de quelques nanomètres à quelques micromètres.



D'une façon générale, cette technologie utilise trois composantes essentielles :

#### Une source :

Il s'agit de la réserve où se trouve le matériau à déposer. Elle contient les espèces voulues (carbone pour le dépôt de DLC). Il peut s'agir d'une plaque métallique, d'un creuset ou même d'une simple bouteille de gaz. On va chercher à disperser les éléments de la source sous forme d'atomes, d'ions en phase vapeur.

#### Un milieu :

Il permet le transport de la matière depuis la source jusqu'au substrat à revêtir, avec un éventuel apport d'énergie. Le milieu contrôle aussi les réactions chimiques intervenant entre les espèces de la source et un gaz (dépôts réactifs).

#### Un substrat :

Il s'agit de la pièce à revêtir sur laquelle se produit le phénomène de condensation. La matière évaporée à partir de la source vient se fixer sur le substrat pour former des germes qui croissent jusqu'à conduire à la formation de la couche finale. L'état de surface du substrat est en général reproduit.

De nombreux procédés sont utilisés pour déposer des couches minces de DLC. Ils peuvent être répertoriés en deux grandes familles dépendant de la provenance des atomes de carbone : les dépôts physiques en phase vapeur (PVD Physical Vapor Deposition) et les dépôts chimiques en phase vapeur (CVD : Chemical Vapor Deposition). La première famille s'appuie sur la vaporisation d'un bloc solide, alors que la seconde utilise la dissociation de précurseurs gazeux [70], [49] et [71]. Ces techniques sont détaillées dans les deux parties qui suivent.

##### **2.3.1. Méthodes physiques (PVD : Physical Vapor Deposition)**

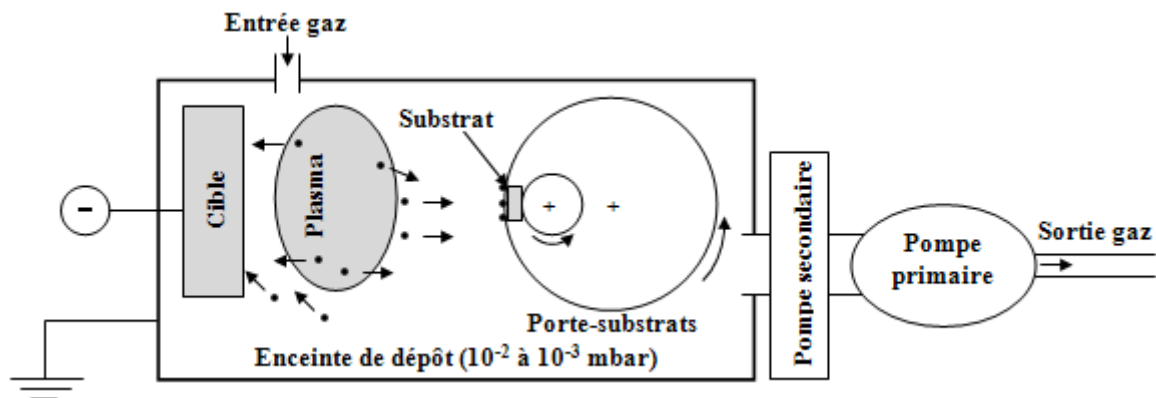
Les dépôts DLC obtenus par PVD sont obtenus par évaporation d'un matériau solide à partir d'une cible constituée le plus souvent de graphite. La cible de graphite peut être vaporisée par diverses techniques [72] et les dépôts sont réalisés sous un vide poussé ( $10^{-2}$ - $10^{-3}$  mbar) de façon à conférer une grande pureté aux couches [73]. Les atomes de ce matériau viennent ensuite se condenser sur le substrat, et forment des couches de quelques microns.

On recense différentes techniques PVD, en fonction :

- du mode de production de la vapeur,
- de l'état électrique du substrat,
- de la nature du gaz constituant le milieu.

L'évaporation des espèces de la source sous vide peut être obtenue par pulvérisation cathodique, par bombardement ionique ou électronique, par effet Joule [74], par induction, par un arc électrique ou bien encore par faisceau laser. Certaines de ces méthodes ne fournissent pas une énergie suffisante pour évaporer le carbone qui nécessite une température très élevée, la température d'ébullition du carbone étant de 3825 °C d'après David [75].

Le dépôt de DLC par pulvérisation cathodique (Figure 29) est le procédé PVD le plus répandu industriellement car il n'est pas nécessaire de chauffer le substrat. Ce procédé utilise un bombardement ionique de la cible pour pulvériser le matériau à déposer. Un plasma est réalisé sous pression réduite dans l'enceinte (généralement avec de l'argon), entre les parois à la masse et la cible portée à un potentiel négatif de l'ordre de 1500 V. Les ions  $\text{Ar}^+$  produits par le plasma sont alors accélérés et attirés vers la cathode (cible). Si l'énergie cinétique des ions est supérieure à quelques centaines d'électron-volts, les atomes de la cible sont éjectés par transfert de quantité de mouvement. La vapeur métallique ainsi formée se condense sur le substrat. Ce plasma permet non seulement de pulvériser la cible quand la tension appliquée est suffisamment grande, mais également de décaper une surface, celle de la cible, pour plus de pureté ou celle des substrats à revêtir pour un meilleur accrochage de la couche.



*Figure 29 : Procédé de Dépôt Physique en phase Vapeur : principe de la pulvérisation cathodique - adapté de [76]*

Dans le cas de la pulvérisation par magnétron, un champ magnétique est superposé au champ électrique pour obtenir un rendement d'ionisation plus élevé [77], [78], les lignes de champ magnétique confinant les électrons au voisinage de la cathode.

Les paramètres de dépôt des couches minces de DLC par pulvérisation sont les suivants :

- La pression de travail de l'enceinte (plus la pression est basse et plus les trajectoires des particules vaporisées sont rectilignes) contrôlent la pureté des couches,

- Le débit de gaz résiduel contrôle en partie la vitesse du dépôt et sa composition chimique,
- La puissance du générateur contrôle en partie l'énergie cinétique des particules arrachées, et donc l'adhérence des dépôts ainsi que la nature de la couche déposée,
- La tension de polarisation du porte-substrats permet d'augmenter la densité relative du dépôt grâce à une pulvérisation des atomes peu adhérents de la couche en formation et à leur redéposition [79],
- La densité de courant,
- La géométrie de l'ensemble conditionne le transport des espèces par diffusion et leur fragmentation, influence directement la vitesse de croissance ainsi que la nature chimique et structurale du matériau obtenu,
- Le temps de dépôt détermine la cinétique de croissance des dépôts,
- La nature du type de décharge électrique : l'ionisation du gaz dépend de la fréquence du courant appliqué. Ce dernier contrôle le déplacement et la trajectoire des espèces chargées,
- La température du substrat influence principalement les réactions à la surface du substrat en favorisant la mobilité des espèces et leur désorption. Elle contrôle ainsi les vitesses de croissance de la couche,
- La présence, ou non, de champs magnétiques permet d'obtenir un rendement d'ionisation plus élevé.

Les procédés d'élaboration des couches DLC par voie physique donnent principalement lieu à des revêtements non hydrogénés a-C de 3 à 5  $\mu\text{m}$  d'épaisseur [80], [81], [82] et [83]. Il y a toujours un peu d'hydrogène contenu dans les couches DLC, cet hydrogène se trouve sous forme d'impuretés. En revanche, un gaz réactif hydrogéné peut être introduit pour favoriser la croissance de carbone amorphe hydrogéné a-C:H mais cette technique se trouve à l'interface entre les méthodes physiques et chimiques car des réactions chimiques interviennent dans le processus de dépôt.

### **2.3.2. Méthodes chimiques (CVD : Chemical Vapor Deposition)**

Le principe des dépôts chimiques est de faire interagir un gaz avec le milieu qui transporte les espèces voulues vers les surfaces à revêtir [84]. On provoque alors une ou plusieurs réactions chimiques en surface, donnant au moins un produit solide. Les autres produits de réaction doivent bien évidemment être gazeux pour pouvoir être éliminés par pompage hors de l'enceinte. Les dépôts se font à pression variable, mais il faut systématiquement un apport énergétique pour favoriser ces réactions. On peut différencier les techniques CVD en fonction du type d'énergie utilisée pour activer cette réaction chimique. On distingue ainsi les procédés non assistés et les procédés assistés par plasma.

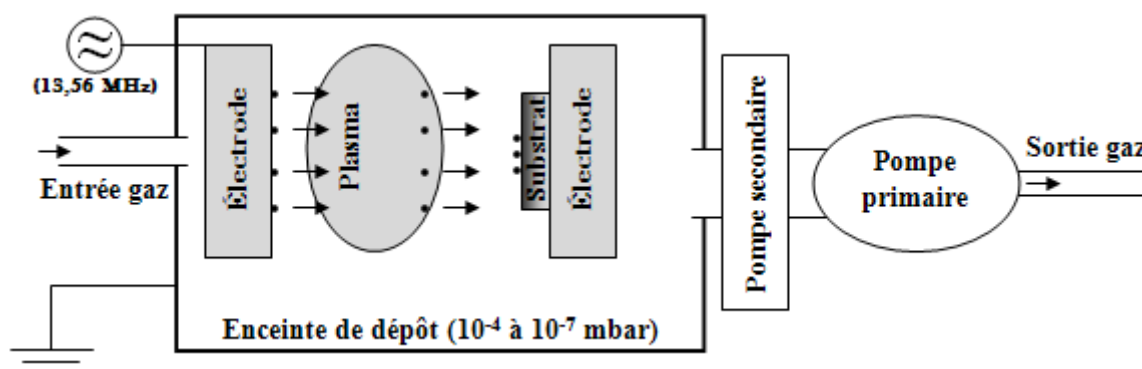
On parle de CVD non assisté quand la température du substrat fournit l'énergie nécessaire à l'activation de la réaction chimique. Le substrat doit être chauffé à une température qui est comprise, selon les matériaux à déposer, entre 500 et 2000 °C. Cette température est

généralement obtenue par chauffage direct lors du passage d'un courant électrique dans le substrat ou via un chauffage par induction haute fréquence. La technique CVD non assistée présente des avantages certains. En particulier, l'épaisseur des dépôts peut aller jusqu'à une dizaine de micromètres avec des vitesses de dépôt variant de quelques micromètres à plusieurs dizaines de micromètres par heure (typiquement, 6  $\mu\text{m/h}$ ) [85]. Les matériaux ainsi déposés sont denses, très adhérents sur les substrats, et peuvent recouvrir des pièces de formes complexes avec une épaisseur homogène. La structure granulaire et l'orientation cristallographique de croissance peuvent également être contrôlées.

Néanmoins, l'inconvénient majeur de cette technique reste la limite de température que peut supporter le substrat. En effet, de nombreux matériaux ne peuvent pas être chauffés à ces températures sans se détériorer ou subir des modifications de caractéristiques physiques. C'est pourquoi, le plus souvent, ce procédé est assisté par un plasma générant une forte décharge électrique pour activer les réactions chimiques, permettant d'abaisser considérablement la température du substrat.

On parle de CVD assisté par plasma quand l'énergie nécessaire à l'activation de la réaction chimique est apportée par l'action des électrons du plasma. On peut donc déposer des matériaux sur des substrats qui ne supporteraient pas les températures imposées par le dépôt CVD non assisté.

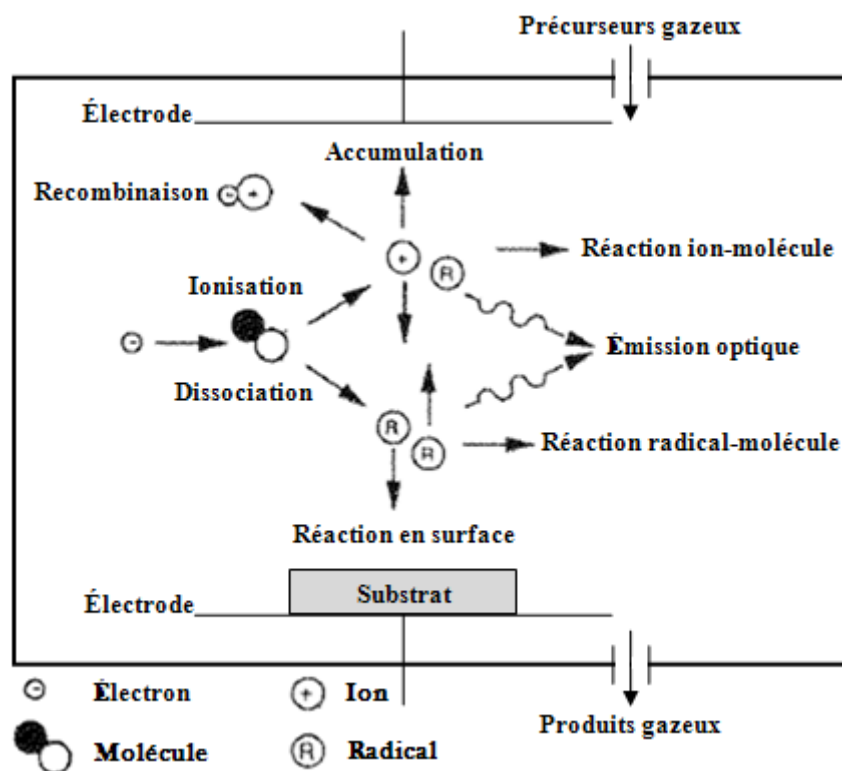
Il existe de nombreuses manières de créer un plasma dans un gaz. Par exemple, un filament de tungstène chauffé par le passage d'un courant électrique émet des électrons, qui au contact du gaz engendreront un plasma (HFCVD : Hot Filament CVD). Toutefois, les méthodes les plus courantes sont les procédés PACVD (Plasma-Assisted Chemical Vapor Deposition), présentés en Figure 30, où le plasma est habituellement généré par une décharge électrique entre deux électrodes (configuration « diode ») dans une enceinte contenant un gaz (argon en général) à des pressions de l'ordre de  $10^{-5}$  mbar. Différents types de décharges électriques peuvent être utilisés : continues (DC) ou alternatives comme la basse fréquence (10 à 100 KHz), radio-fréquences (13,56 MHz) ou bien encore micro-ondes (GHz).



*Figure 30 : Schéma de principe du procédé de dépôt CVD assisté par plasma (PACVD) avec excitation radio-fréquences - adapté de [86]*

Le plasma ainsi produit permet la dissociation du précurseur gazeux hydrocarboné (la source, en général de l'acétylène). Les électrons libres présents naturellement dans le gaz sont accélérés

par le champ électrique ainsi appliqué, jusqu'à ce qu'ils rencontrent un atome ou une molécule sur leur parcours. Si le choc est inélastique, une ionisation de cet élément peut survenir. Un phénomène de multiplication des électrons se développe alors, avec en parallèle, la formation d'ions positifs. Le plasma est alors composé d'électrons, d'ions, de photons, d'atomes et molécules neutres et de radicaux libres (Figure 31), produits par les différentes interactions entre particules ce qui conduit à la formation d'espèces actives chimiquement susceptibles d'interagir entre elles ainsi qu'avec les substrats à traiter [79].



*Figure 31 : Schéma présentant les interactions qui interviennent lors de la dissociation du gaz précurseur dans un plasma - d'après [87]*

Les techniques CVD assistées par plasma (PACVD) présentent en outre l'avantage de mieux couvrir des pièces de géométrie complexe. Les proportions des liaisons  $sp^2$  ou  $sp^3$ , ainsi que la teneur en hydrogène du dépôt, dépendent directement des paramètres du procédé et affectent les propriétés des revêtements DLC. Ce procédé permet les températures de dépôt les plus faibles (de 25 à 300 °C) et autorise l'utilisation de tout type de substrat. Il est bien adapté au dépôt de carbone et donne principalement naissance aux dépôts de carbone hydrogénés a-C:H [88], [89] et [90].

La limitation principale du procédé PACVD est la difficulté à déposer des matériaux purs. La température des substrats étant relativement basse, les gaz produits par la réaction ne se désorbent pas et se trouvent donc incorporés dans la couche. Même si ces méthodes se prêtent bien aux dépôts à base de carbone, elles restent délicates à mettre en œuvre pour les dépôts métalliques, surtout en comparaison avec les méthodes PVD (nécessité d'utiliser des gaz organométalliques).

Les principales caractéristiques prises en compte pour le choix d'une technique de dépôt sont résumées dans la Table 6 :

Caractéristiques	PVD		CVD	
	Évaporation	Pulvérisation	Non assisté	Assisté par plasma
Production de l'espèce à déposer	Énergie thermique	Transfert de moment	Réaction chimique	Réaction chimique
Vitesse de dépôt	Jusqu'à 75 $\mu\text{m}/\text{min}$	Faible (sauf pour les métaux purs)	De 1 à 20 $\mu\text{m}/\text{h}$	Moyenne (200 à 2500 $\text{\AA}/\text{min}$ )
Espèce déposée sous forme de	Atomes et ions	Atomes et ions	Atomes	Atomes
Dépôt sur des substrats de formes complexes	Peu recommandé	Assez bons résultats mais épaisseur non uniforme	Assez bons résultats	Bons résultats
Dépôt de métaux, alliages, composés réfractaires	Oui	Oui	Oui	Peu adapté
Énergie des atomes de l'espèce déposée	Faible (0,1 à 0,5 eV)	Peut être élevée (1 à 100 eV)	Peut être élevée	Peut être élevée
Bombardement du substrat puis de la couche par des ions de gaz inerte	Non (sauf assistance par un canon à ions externe)	Oui	Oui	Possible
Type de DLC	a-C	a-C a-C:H	a-C:H	a-C:H
Chauffage du substrat par moyens externes	Oui (500 à 2000 °C)	Oui ou non (300 à 500 °C)	Oui (500 à 2000 °C)	Oui ou non (< 300 °C)

*Table 6 : Caractéristiques principales des méthodes de dépôt sous vide - d'après [91]*

### 2.3.3. Mécanismes de croissance des couches minces

Au cours du dépôt sous vide (PVD/CVD), les atomes et les molécules provenant d'une vapeur incidente au voisinage du substrat sont attirés par les atomes de la surface du substrat via des forces de type Van der Waals. Les espèces de la vapeur incidente se physisorbent ainsi sur la surface. Les liaisons électrostatiques mises en jeu sont faibles, de l'ordre de 0,1 eV par atome.

Une fois les atomes adsorbés sur la surface, ces derniers possèdent néanmoins un degré de mobilité grâce auquel ils diffusent pendant un temps qui dépend principalement de l'énergie de désorption de l'atome et de la température du substrat [92]. Leurs mouvements résultent soit de l'agitation thermique soit de l'énergie cinétique qui leur est conférée lors du procédé de dépôt (de 0,1 eV en évaporation thermique à plusieurs dizaines d'eV en PACVD).

Lors de sa diffusion en surface, si l'atome ne rencontre aucun site favorable, il désorbe. En revanche, si l'atome rencontre un site favorable, il se lie chimiquement avec le substrat. On parle de site de germination. En outre, lorsqu'un atome adsorbé rencontre un site déjà occupé, il peut se lier au germe en formation. Ainsi, à mesure que les espèces arrivent à la surface du substrat, le nombre et la taille des germes augmentent, jusqu'à un maximum dépendant notamment de la vitesse de dépôt et du nombre de sites de germination initialement présents à

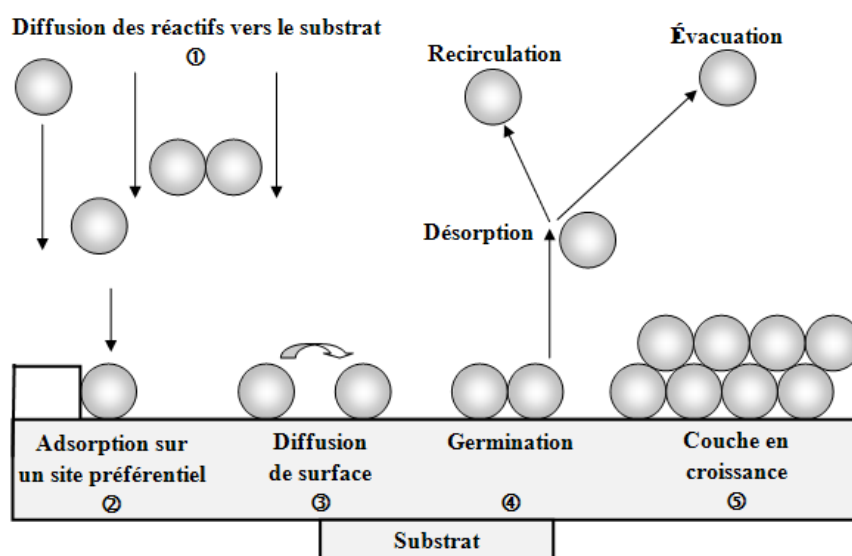
la surface [92]. Lorsque les germes deviennent assez larges, ils coalescent pour former une couche continue.

Une fois la coalescence effectuée, une couche atomique se forme. La limite entre le substrat et cette couche atomique caractérise l'interface. La nature de l'interface dépend de la morphologie de surface du substrat, de la contamination du substrat, des interactions chimiques atomes/surface, de l'énergie des atomes déposés et du comportement de nucléation des atomes déposés [93].

Cette interface peut être :

- Mécanique : accrochage simplement mécanique du matériau de la couche sur une surface rugueuse. Une rugosité importante du substrat favorise généralement l'adhérence de la couche,
- Abrupte : elle correspond à un changement brutal de composition chimique entre le dépôt et le substrat sur une distance de 2 à 5 Å. Ce type d'interface présente une très faible adhérence qui résulte uniquement des forces de Van der Waals,
- Composée : couche de composition constante, épaisse de plusieurs paramètres de maille et créée par une interaction chimique entre les matériaux de la couche et le substrat. La formation d'un nouveau composé peut provoquer des contraintes résiduelles et éventuellement favoriser une formation de fissures à l'interface,
- Diffusée : diffusion des éléments de la couche dans le substrat et inversement ce qui génère un changement graduel de composition avec formation d'un composé à l'interface. Généralement, ce type d'interface présente une bonne adhérence.

Lorsque les germes sont jointifs et que la zone interfaciale est formée, la couche commence à s'épaissir, c'est la phase de croissance. La façon dont la couche se forme et croît détermine ses propriétés finales. Elle est bien souvent influencée par l'état de surface (géométrique et chimique) du substrat. La Figure 32 propose une représentation schématique des processus atomiques impliqués lors de la croissance des couches minces depuis l'adsorption des atomes jusqu'à la croissance du dépôt.



*Figure 32 : Représentation schématique des processus atomiques impliqués dans la croissance des couches minces depuis l'adsorption des atomes jusqu'à la croissance du dépôt d'après [92]*

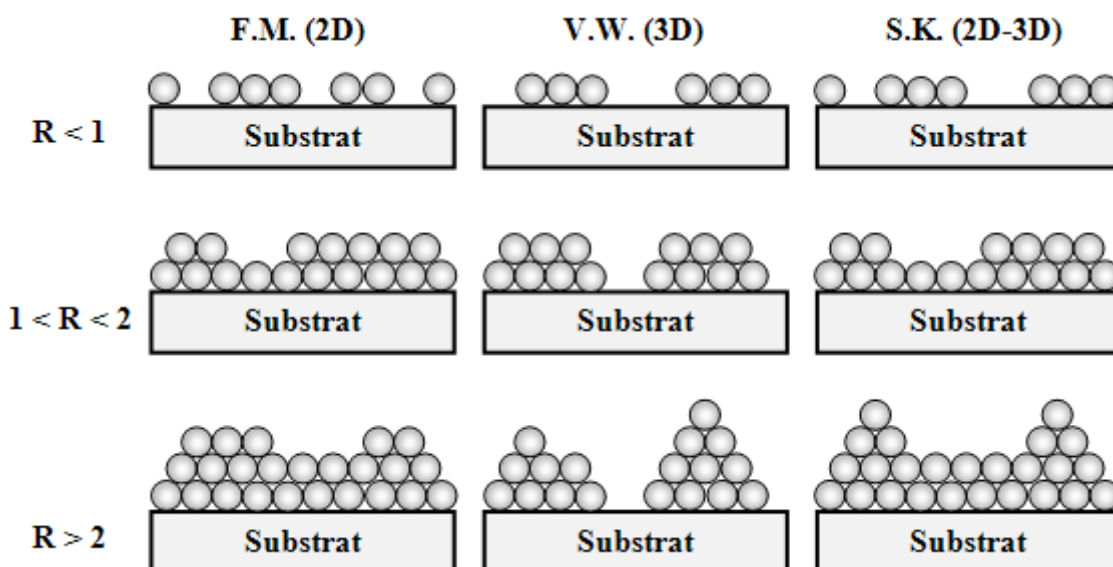
Lors de la croissance de la couche, divers processus physico-chimiques et plusieurs modes de croissance peuvent intervenir. On distingue trois modes principaux de croissance des couches, de l'échelle la plus petite, atomique, à la plus grande, macroscopique, c'est-à-dire des premiers stades de la croissance jusqu'à l'obtention d'une couche continue.

### Mécanismes de croissance à l'échelle atomique :

Expérimentalement, trois principaux modes de croissance sont observés :

- Le mode de croissance Frank-van der Merwe (F.M.) [94] correspond à une croissance bidimensionnelle (2D). Elle s'effectue alors monocouche atomique par monocouche atomique et la surface reste plane à l'échelle atomique au cours de la croissance. Ce mode de croissance est favorisé lorsque les liaisons avec les atomes du substrat sont plus fortes qu'avec les autres atomes déposés,
- Le mode de croissance Volmer-Weber (V.W.) [95] décrit une croissance tridimensionnelle (3D) d'îlots dans les premiers instants. La nucléation de la phase condensée s'effectue tout d'abord sous forme de petits clusters distincts sur la surface du substrat. Ensuite, avec l'arrivée d'autres atomes, les clusters grossissent en îlots qui commencent par se toucher via des phénomènes capillaires et finalement coalescent pour former un film continu. Ce mode de croissance se produit lorsque les atomes adsorbés sont plus fortement liés entre eux qu'aux atomes du substrat,
- Le mode de croissance Stranski-Krastanov (S.K.) [95] correspond à une croissance mixte débutant par une croissance bidimensionnelle et qui devient tridimensionnelle au-delà d'une épaisseur critique pour laquelle une relaxation des contraintes accumulées provoque l'apparition d'îlots nanométriques.

Ces différents modes de croissance sont illustrés schématiquement sur la Figure 33.



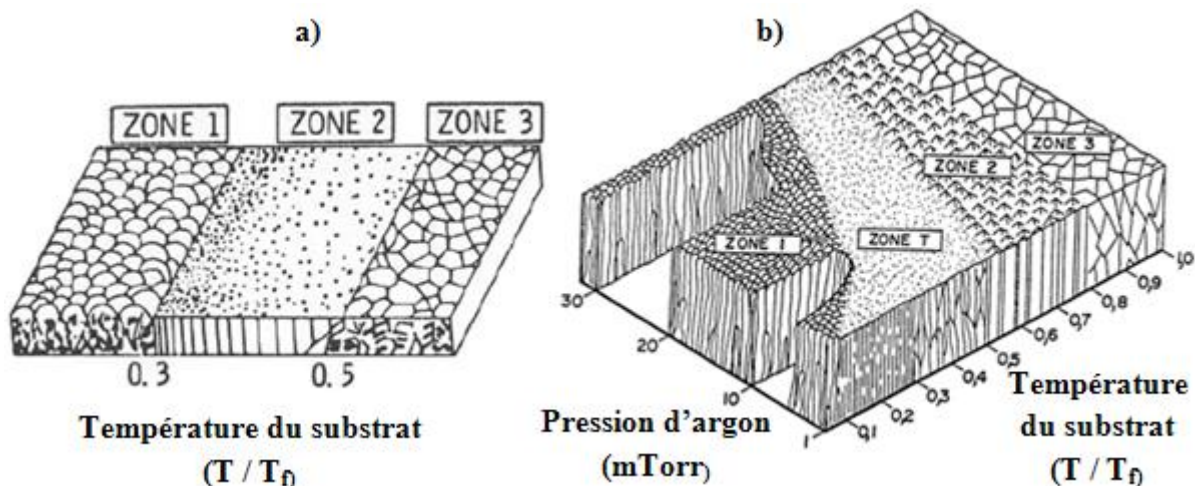
*Figure 33 : Schémas des mécanismes de croissance des couches minces selon les modes proposés par Frank-van der Merwe (F.M.), Volmer-Weber (V.W.) et Stranski-Krastanov (S.K.).  $R$  est le recouvrement atomique du substrat, en monocouches atomiques - adapté de [92]*



Une description plus complète des mécanismes de croissance des couches minces nécessite de s'intéresser aux processus de croissance des films continus, bien au-delà des étapes de nucléation et de coalescence.

### Mécanismes de croissance à l'échelle macroscopique :

Une représentation schématique et qualitative, en terme énergétique, du lien existant entre les conditions de dépôt et les morphologies de couches minces obtenues peut être apportée par le diagramme de Thornton. S'appuyant sur le modèle simple proposé par Movchan et Demchisin [96], (Figure 34a), Thornton propose une classification schématique plus complète [97] sur un diagramme présentant des zones micro-structurales, (Figure 34b), en fonction du rapport de températures  $T/T_f$ , où  $T$  est la température de dépôt et  $T_f$  la température de fusion du matériau déposé en couche mince, et de la pression de dépôt. Les limites des zones du diagramme de Thornton dépendent du procédé de dépôt utilisé, de l'énergie des espèces arrivant sur la surface en croissance et du matériau déposé.



**Figure 34 : Modèles schématiques de zones structurales pour la morphologie de croissance de couches minces. a) Diagramme de zones proposé par Movchan et Demchishin en fonction de la température de dépôt. b) Diagramme de zones proposé par Thornton en fonction de la température et de la pression de dépôt. ( $T_f$  est la température de fusion du matériau déposé) - d'après [92]**

Les morphologies de couches présentées sur la Figure 34b présentent les caractéristiques suivantes :

- En zone 1, on observe une microstructure composée de colonnes à la surface en forme de dômes, séparées par des vides inter-colonnaires assez larges. La surface de cette structure est rugueuse en raison des effets d'ombrage (les dômes reçoivent plus de matière que les creux de la surface) et d'une diffusion de surface très limitée.

- En zone T, la croissance s'effectue sous forme de fibres assemblées en une structure dense, et comme les effets d'ombrage sont minimisés par rapport à la zone 1, l'aspect de surface est relativement lisse.
- En zone 2, la largeur des colonnes est fixe sur l'épaisseur de la couche, et les colonnes, organisées de manière dense, sont séparées par des joints de grains bien définis. Les effets d'ombrage sont faibles dans cette zone où la diffusion de surface est importante,
- En zone 3, la diffusion de surface est prépondérante. La recristallisation engendre des grains bidimensionnels, bien délimités.

#### **2.3.4. Adhérence des dépôts DLC**

Des difficultés sont rencontrées pour assurer l'adhérence des dépôts DLC. En effet, ces dépôts présentent des contraintes résiduelles en compression de plusieurs GPa. On définit les contraintes résiduelles comme étant les contraintes demeurant dans une structure mécanique alors qu'aucune sollicitation extérieure n'est appliquée. Ces contraintes sont à l'origine d'un cisaillement excessif à l'interface dépôt/substrat conduisant à une délamination de la couche DLC. De plus, dans le cas des substrats métalliques, les atomes de carbone, contrairement aux atomes de chrome ou de titane, ne sont pas capables de créer des liaisons métalliques avec les atomes du substrat assurant l'adhérence du dépôt.

Une manière de résoudre le problème d'adhérence des DLC sur des substrats métalliques est la production de revêtements fonctionnels au lieu de films homogènes tels que les monocouches. Les revêtements fonctionnels présentent une ou plusieurs couches intermédiaires, dites d'accrochage, entre le substrat et le revêtement de surface final. Ces couches intermédiaires sont généralement des composés à base de silicium ou de titane [98], [99] qui peuvent former des liaisons covalentes avec le carbone du DLC et des liaisons métalliques avec le substrat. L'objectif des couches intermédiaires est d'obtenir des liaisons chimiques et mécaniques, et les coefficients de dilatation thermique les plus compatibles entre les couches. Enfin, les sous-couches d'accrochage permettent également de compenser les contraintes résiduelles importantes présentes dans les DLC. C'est pourquoi on utilise la PVD (pulvérisation cathodique) pour déposer les sous-couches d'accrochage, et la CVD (PACVD) pour le dépôt de DLC.

#### **2.3.5. Élaboration d'un multicouche à base de carbone**

Dans le cadre de cette thèse, deux échantillons ont été revêtus de DLC. Le premier substrat est une bille en acier AISI 52100 de diamètre 19,05 mm, le second substrat est un disque en Quartz de diamètre 60 mm. Des dimensions et des caractéristiques supplémentaires des deux substrats sont détaillées au paragraphe 3.2.3 du chapitre 3. Ces échantillons ont été choisis, d'une part, de façon à assurer la compatibilité avec le dispositif expérimental (précisément décrit au chapitre 3 utilisé pour la simulation expérimentale de la zone SPC et, d'autre part, pour permettre la visualisation des zones de contact et l'analyse du comportement tribologique des surfaces carbonées en présence de lubrifiant vieilli (réduction du frottement par le biais des couches DLC, visualisation des interactions entre les couches DLC et les particules solides de suies).

Avant de procéder au dépôt des couches minces de **DLC** sur les échantillons, il est nécessaire de s'assurer du bon état morphologique initial de la surface car le dépôt de **DLC** reproduit l'état de surface initial du substrat. Pour les besoins de l'application tribologique, il est nécessaire de s'affranchir au maximum des effets de la rugosité de la bille et du disque. La bille en acier est alors polie jusqu'à obtenir une rugosité **RMS** de l'ordre de 10 nm (le procédé de polissage est précisément décrit au paragraphe 3.2.3. du chapitre 3. Le disque en Quartz ne nécessite pas de polissage préalable en raison d'une rugosité **RMS** de l'ordre de 5 nm.

Avant le dépôt, la bille et le disque sont nettoyés dans un premier bain à ultrasons rempli d'heptane pendant 10 min puis dans un second bain rempli de propanol pendant 10 min également. Entre chacune de ces étapes, les substrats sont immédiatement soufflés à l'azote pour sécher la surface.

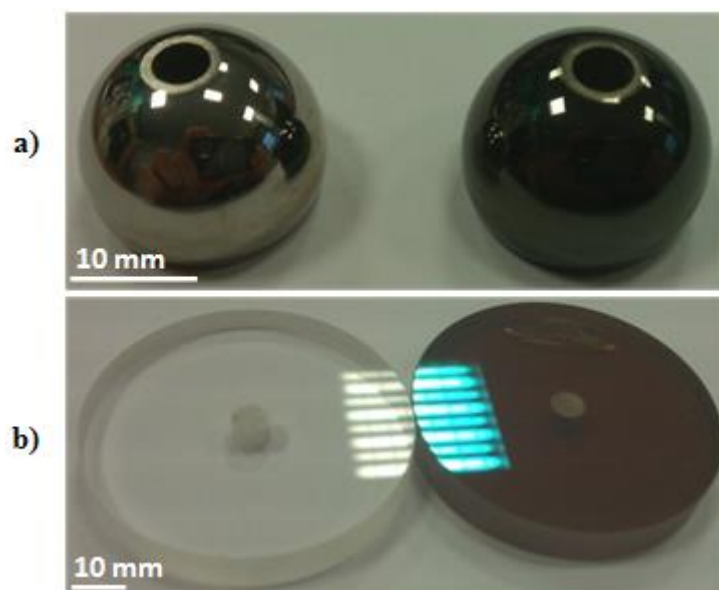
Dès lors que les procédés d'élaboration des revêtements **PVD** et **CVD** sont maîtrisés, les substrats sont placés dans l'enceinte sous vide d'une machine de dépôt afin d'élaborer l'ensemble des couches minces. Pour des raisons de confidentialité, la description précise des gammes de dépôt ne sera pas décrite. Comme l'état électrique des substrats est différent (l'acier est conducteur, le Quartz est isolant), et que les propriétés optiques désirées des **DLC** déposés sont différentes (dépôt complètement opaque à la lumière sur la bille et donc épais, dépôt semi-réfléchissant sur le disque et donc de faible épaisseur), les techniques d'élaboration des couches sont légèrement différentes entre les deux substrats. Deux machines de dépôt distinctes sont nécessaires.

Une fois les substrats mis sous vide, les surfaces sont bombardées avec des ions ce qui permet leur nettoyage/décapage par désorption d'impuretés et élimination d'oxydes, d'éviter les éventuels problèmes d'adhérence mais aussi d'activer chimiquement la surface et d'accroître ainsi le nombre de sites de germination.

Pour les deux substrats, les premières couches élaborées sont des couches d'accrochage, réalisées par **PVD** (pulvérisation cathodique). Elles sont nécessaires à l'adhérence des dépôts **DLC**. La nature chimique, le nombre, l'ordre et l'épaisseur des couches d'accrochage sont optimisés pour chaque type de revêtement **DLC** et dépendent principalement de la composition chimique du substrat et de l'application. Dans le cas de la bille en acier, les sous-couches d'accrochage sont composées de la manière suivante : Cr + WCC. Dans le cas du disque, il n'y a qu'une seule couche d'accrochage à base de silicium.

L'élaboration des couches minces de **DLC** est obtenue par **CVD** (**PACVD**) pour la bille et le disque. La pression de travail dans l'enceinte est maintenue inférieure à  $10^{-5}$  mbar, et la température de dépôt est comprise entre 100 et 200 °C pour les deux substrats. La vitesse de dépôt du **DLC** est d'environ 1  $\mu\text{m/h}$  dans le cas de la bille et de 3  $\mu\text{m/h}$  dans le cas du disque. Le dépôt de carbone amorphe est obtenu par dissociation d'un hydrocarbure gazeux (volontairement non communiqué pour des raisons de confidentialité) qui conduit à un revêtement **DLC** hydrogéné pour les deux substrats, de type a-C:H.

La Figure 35 montre les deux échantillons (bille et disque) avant et après dépôt.



*Figure 35 : a) À gauche, bille en acier polie miroir non revêtue (gris métallique). À droite, bille en acier revêtue d'une couche mince de DLC (noir brillant). b) À gauche, disque en Quartz vierge de tout dépôt (complètement transparent). À droite, disque en Quartz revêtu d'une fine couche de DLC (semi-réfléchissant). La variation de la réflexion de la lumière à la surface des deux disques montre bien l'existence du dépôt*

La Table 7 résume l'ensemble des caractéristiques et paramètres des procédés d'élaboration d'un multicouche à base de carbone sur les deux substrats.

Caractéristiques	Bille	Disque
Géométrie	Diamètre de 19,05 mm	Diamètre de 60 mm
Matériau	Acier AISI 52100	Quartz
Polissage (avant dépôt)	Oui	Non
Nettoyage (avant dépôt)	Oui	
Procédé de dépôt du DLC	PACVD	
Origine des espèces à base de carbone	Hydrocarbure gazeux	
Sous-couches d'accrochage (PVD)	Cr + WC <sub>2</sub> C + a-C:H	Si + a-C:H
Température de dépôt du DLC	Entre 100 et 200 °C	
Vitesse de déposition du DLC	De 0,5 à 1 µm/h	De 20 à 50 nm/h
Pression de travail	Inférieure à 10 <sup>-5</sup> mbar	

*Table 7 : Tableau de synthèse concernant les paramètres d'élaboration des couches minces de DLC sur la bille et le disque*

## 2.4. Caractérisation des dépôts DLC réalisés

### 2.4.1. Mesure de l'épaisseur

L'épaisseur des couches minces de DLC issue des techniques PVD et CVD reste, dans la majorité des cas, inférieure à 10 µm ce qui rend la mesure d'épaisseur délicate. Celle-ci est réalisée à l'aide d'un Calotest™, aussi appelé test de la bille. Ce procédé fournit une détermination rapide, simple et peu onéreuse de l'épaisseur des revêtements les plus courants. Une sphère de roulement en 100 Cr6 de diamètre 30 mm est placée en rotation sur la surface de l'échantillon. L'addition d'un fluide abrasif permet d'obtenir une empreinte circulaire montrant le travail d'érosion partielle de la couche et du substrat par la sphère (Figure 36).

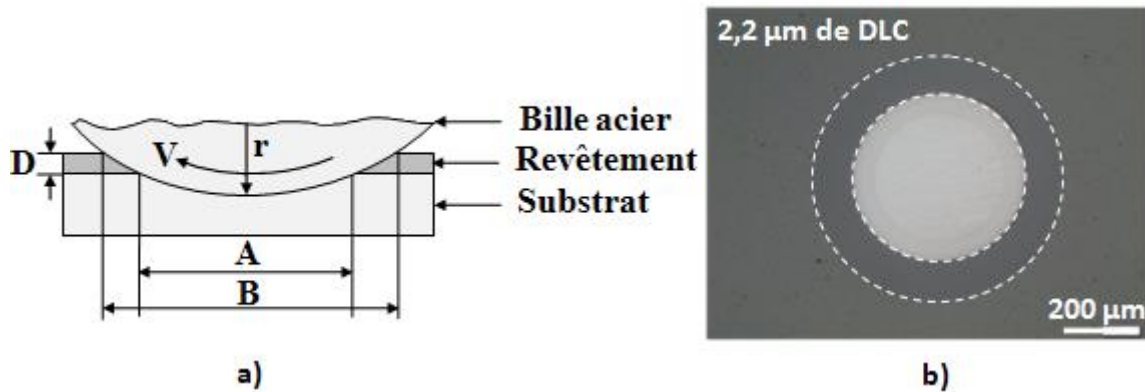


Figure 36 : a) Schéma de principe de la mesure de l'épaisseur d'une couche mince à partir d'un Calotest™. b) Image obtenue après le test du Calotest™, réalisée sur un dépôt de DLC de 2,2 microns d'épaisseur correspondant à l'épaisseur de DLC sur la bille

Lorsque la calotte est suffisamment profonde, le substrat apparaît et l'empreinte résultante est alors mesurée optiquement. L'épaisseur de la couche est alors déduite du diamètre des calottes observées par le biais de l'équation suivante :

$$D = \frac{(B^2 - A^2)}{8 * r} \quad (16)$$

avec :

**D** est l'épaisseur du dépôt [m],

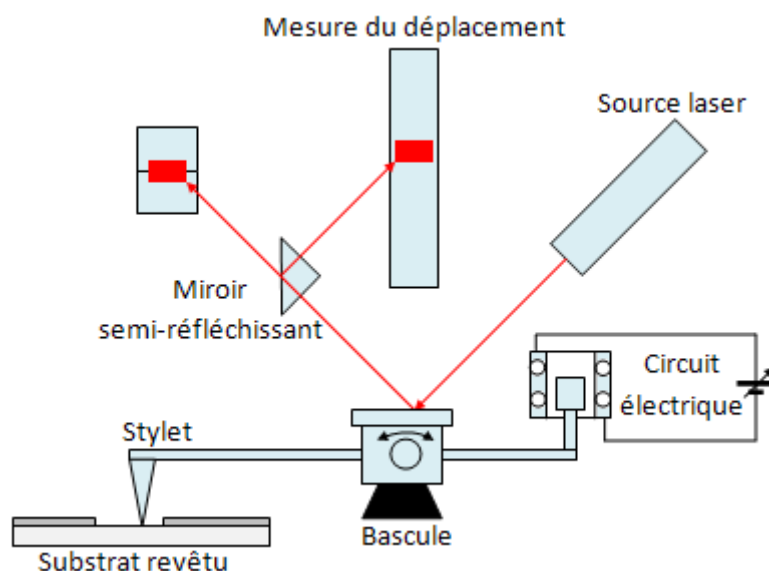
**B** est le diamètre de la plus grande calotte [m],

**A** est le diamètre de la plus petite calotte [m],

**r** est le rayon de la bille [m].

L'épaisseur de dépôt DLC obtenue sur la bille vaut 2,2 µm d'après le Calotest™.

Les couches ultra-minces (inférieures à  $0,5\ \mu\text{m}$ ) se prêtent assez mal au test de la bille car il est difficile de mesurer précisément le diamètre des calottes. L'épaisseur de revêtement DLC sur le disque de Quartz est mesurée par l'équipement Alpha-Step 100. Il s'agit d'un profilomètre mécanique basé sur le principe de la différence de marche et qui permet de caractériser le profil de surface d'une plaque par balayage mécanique avec un stylet dont la pointe est en diamant. Le tracé obtenu est la représentation de la vue en coupe de la zone mesurée. Cet équipement peut mesurer des hauteurs de marche allant de quelques nanomètres jusqu'à plusieurs centaines de microns sur une étendue spatiale maximale de 10 mm (Figure 37).



*Figure 37 : Schéma de principe de la mesure de l'épaisseur d'une couche mince à partir de l'appareil Alpha-Step 100*

Pour obtenir une marche la plus parfaite possible, un trait, jouant le rôle de masque, est fait au marqueur noir avant dépôt sur des lames de verre fixées sur le porte-substrat. À la fin du dépôt, le marqueur est retiré à l'aide d'alcool laissant ainsi apparaître une marche parfaite utilisée pour une mesure précise de l'épaisseur de DLC. L'épaisseur de dépôt DLC réalisé sur le disque vaut 90 nm.

#### 2.4.2. Mesure des propriétés optiques

Afin de satisfaire les conditions opératoires requises pour la visualisation du contact entre la bille et le disque, le disque revêtu doit être semi-réfléchissant. Les niveaux de transmission, d'absorption et de réflexion de la lumière au travers du disque en Quartz revêtu de DLC doivent donc être parfaitement contrôlés.

Les propriétés optiques du disque ont été mesurées au spectrophotomètre. Cet appareil permet de mesurer l'absorbance d'un milieu « transparent » sur une région donnée du spectre visible (Figure 38). Les mesures effectuées en lumière blanche montrent que la transmission de la lumière dans le domaine de longueur d'onde qui s'étend de 400 à 800 nm est quasi constante, de l'ordre de 28 %. La réflexion de la lumière fluctue plus, et sa valeur moyenne se situe autour de 25 %. Ces valeurs sont très proches de celles nécessaires à la visualisation *in situ* lors d'essais tribologiques menés dans cette thèse.

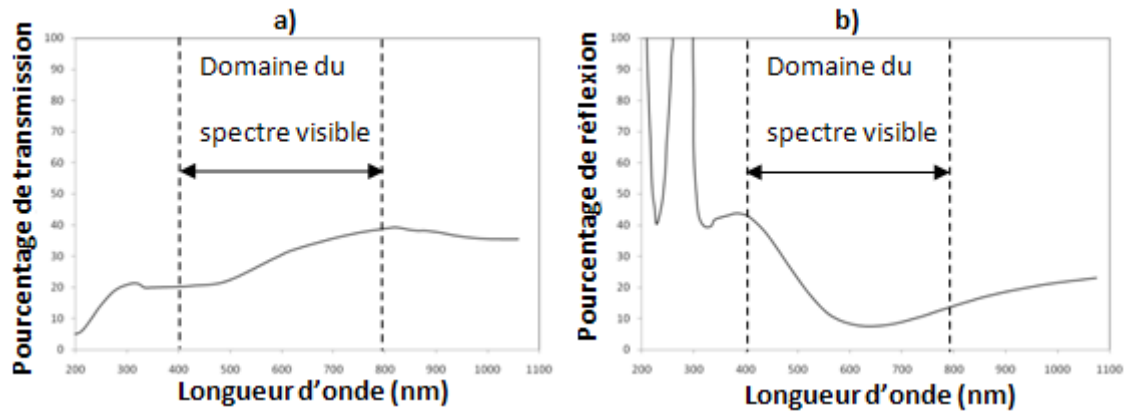


Figure 38 : La figure a) montre le pourcentage de la lumière blanche transmise en fonction de la longueur d'onde. La figure b) montre le pourcentage de la lumière blanche réfléchi en fonction de la longueur d'onde. Dans le domaine du spectre visible (400-800 nm), la transmission et la réflexion sont proches de 30 %, ce qui correspond aux propriétés optiques des disques couramment employés sur le tribomètre IRIS (voir description au chapitre 3)

### 2.4.3. Mesure de l'adhérence

La mesure de l'adhérence se fait classiquement via un scratch test. La technique consiste à réaliser une rayure sur un substrat revêtu à l'aide d'une pointe en diamant de rayon 200  $\mu\text{m}$ . La pointe est placée en contact avec la surface de l'échantillon sous une charge normale croissante à la vitesse de 100 N/min, et la platine est ensuite animée d'un mouvement de translation de 10 mm/min de sorte que, sur la rayure, l'élévation de charge est de 10 N/mm. La déformation excessive du substrat, provoquée par l'indent sous une certaine charge critique, déclenche la fissuration et l'écaillage du dépôt. La force mesurée résulte de la rupture des liaisons interfaciales par propagation d'une fissure cohésive (rupture du dépôt seul) ou adhésive (rupture de l'interface dépôt/substrat) [100]. La rayure peut alors être observée optiquement ce qui fournit des informations sur la taille, la nature et la répartition des défauts des couches déposées (Figure 39).

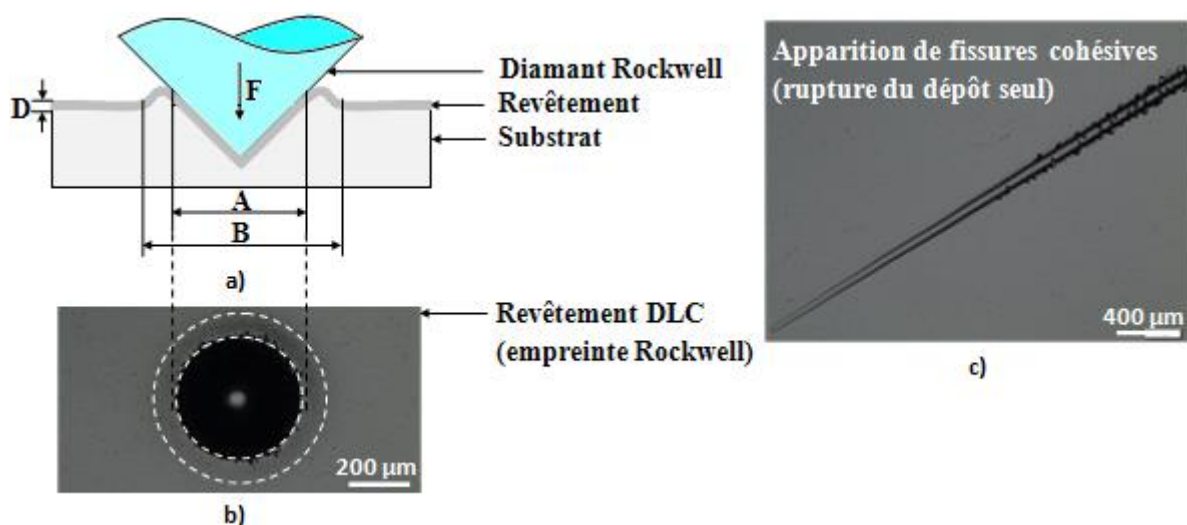
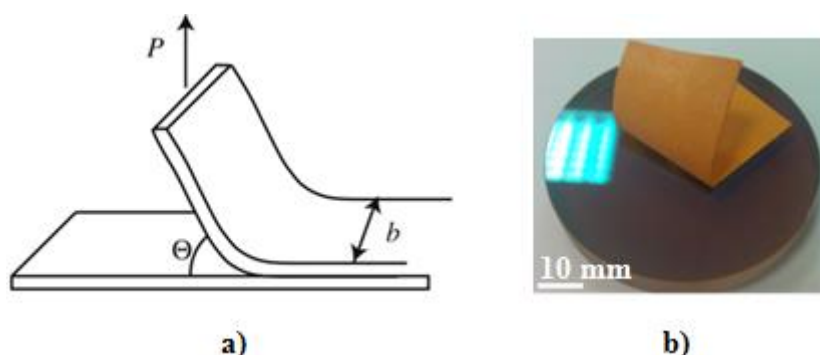


Figure 39 : a) Schéma de principe de la mesure d'adhérence d'une couche mince à partir d'un indenteur Rockwell. b) Empreinte Rockwell obtenue avant l'essai de scratch test. c) Rayure obtenue après l'essai de scratch test, réalisée sur un dépôt de DLC de 2,2 microns d'épaisseur correspondant à l'épaisseur de DLC sur la bille



La qualité de l'adhérence des dépôts DLC influe directement sur les résultats obtenus lors de cette thèse. Une bonne adhérence est donc nécessaire. L'essai de rayure réalisé sur le revêtement DLC de  $2,2\ \mu\text{m}$  fait apparaître la propagation d'une fissure cohésive : seul le dépôt se rompt, ce qui est conforme aux exigences attendues.

L'adhérence du revêtement DLC déposé sur le disque ne peut se faire par l'essai de rayure. En effet, les couches ultra-minces de quelques nanomètres se prêtent assez mal à la mesure d'adhérence par indentation directe, car leur faible épaisseur ne permet pas d'obtenir un délaminage significatif. Le test du pelage a donc été utilisé pour qualifier l'adhérence d'un film mince. Le décollement d'une bande adhésive en contact avec la surface permet de déterminer si la décohésion se fait à l'interface adhésif/couche mince et/ou à l'interface couche mince/substrat (Figure 40).



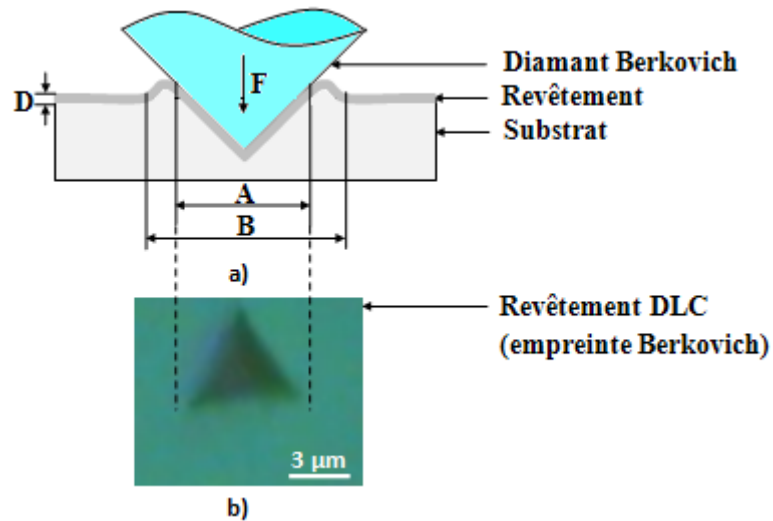
*Figure 40 : a) Schéma de principe de la mesure d'adhérence d'une couche ultra-mince pour un essai de pelage. b) Bande adhésive après essai de pelage sur le disque qui montre que le revêtement DLC est bien adhérent*

L'essai de pelage montre que la couche DLC déposée sur le disque de Quartz est adhérente car il n'y a pas de décohésion majeure des couches, ni à l'interface adhésif/couche mince ni à l'interface couche mince/substrat.

#### **2.4.4. Mesure de la dureté et du module d'élasticité**

Les propriétés mécaniques des couches minces de DLC telles que la dureté et le module élastique sont caractérisées par indentation. L'essai consiste à appuyer un indenteur diamant de géométrie connue sur une surface plane en appliquant une charge croissante jusqu'à une valeur maximale prédéfinie de 50 mN sur une profondeur d'indentation de  $0,3\ \mu\text{m}$ . La charge appliquée est alors réduite jusqu'à observer une relaxation partielle (empreinte rémanente) ou totale sur le matériau (Figure 41). La dureté du matériau est calculée en faisant le rapport de la force appliquée sur la surface de l'empreinte mesurée grâce à des méthodes optiques.





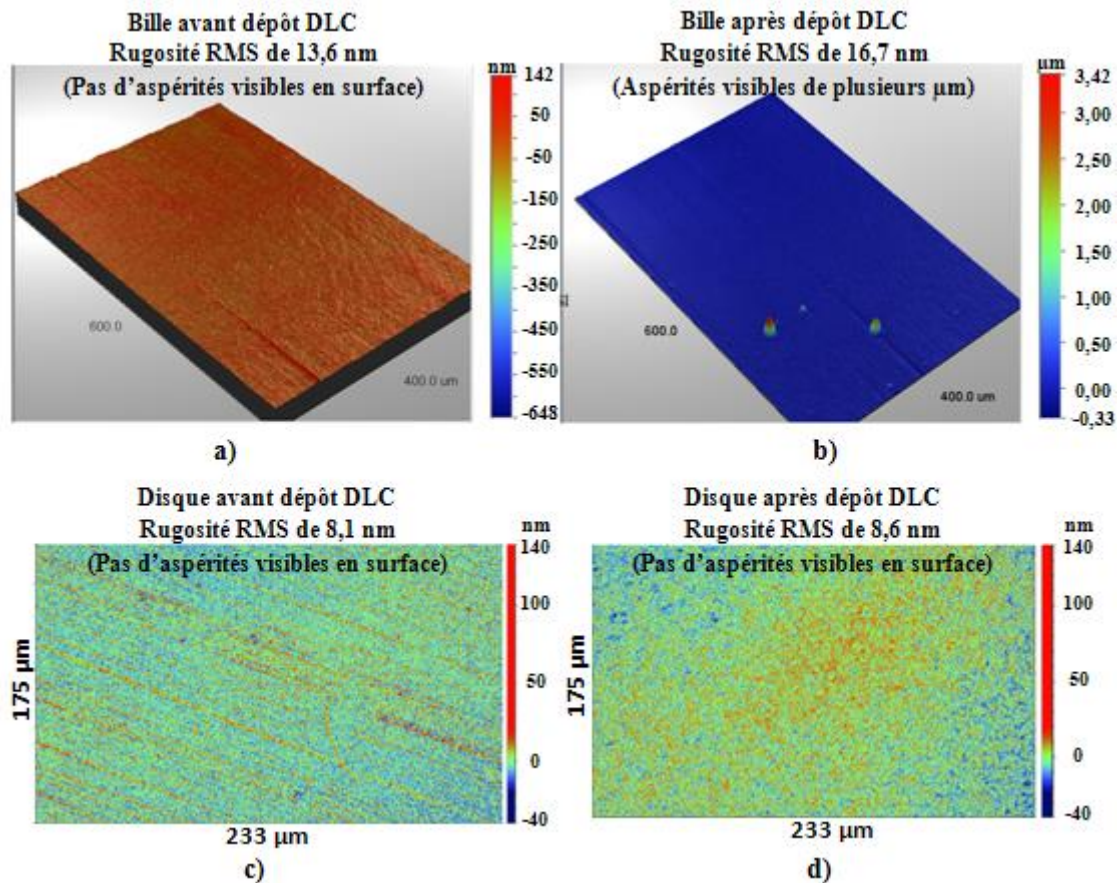
*Figure 41 : a) Schéma de principe de la mesure de dureté d'une couche mince à partir d'un indenteur Berkovich. b) Empreinte Berkovich obtenue après l'essai d'indentation instrumentée sous une charge de 50 mN et une profondeur d'indentation de  $0,3\ \mu\text{m}$ , réalisée sur un dépôt de DLC de 2,2 microns d'épaisseur correspondant à l'épaisseur de DLC sur la bille. La dureté de la couche de DLC est de 3000 Vickers, le module d'élasticité de 120 GPa*

La dureté de la couche de DLC déposée sur la bille est mesurée à plus de 3000 Vickers et le module d'élasticité à plus de 120 GPa.

Malgré un essai de nanoindentation instrumentée, il n'a pas été possible de caractériser finement les propriétés mécaniques du dépôt DLC déposé sur le disque en raison de la faible épaisseur (90 nm) du revêtement. De fait il n'est pas possible de caractériser correctement la couche de DLC sans s'affranchir de l'influence du substrat et les résultats obtenus restent dans l'incertitude de mesure.

#### **2.4.5. Mesure de la topographie de surface**

La topographie de surface des échantillons revêtus DLC a été caractérisée afin de contrôler l'altération morphologique subie au cours du processus de déposition. La topographie de surface de la bille a été mesurée à l'aide d'un profilomètre tactile ayant une pointe dont le rayon de courbure vaut 50 nm (Figure 42a et Figure 42b). La topographie de surface du disque a été mesurée à l'aide d'un rugosimètre sans contact dont le principe de mesure est basé sur l'interférométrie, ceci afin d'éviter de rayer la surface du disque avec la pointe diamant, et donc d'endommager le revêtement DLC (Figure 42c et Figure 42d).

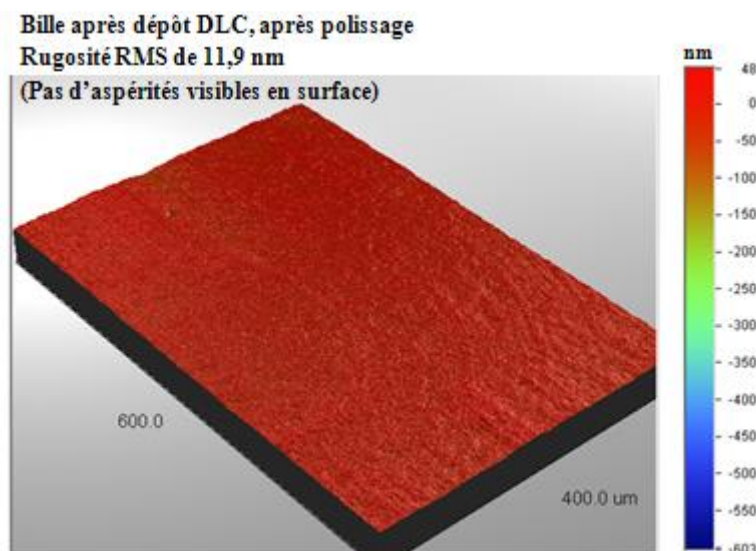


**Figure 42 :** a) Relevé topographique de la bille en acier avant dépôt du revêtement DLC. La rugosité RMS vaut en moyenne 13,6 nm et la surface ne présente pas d'aspérités visibles. b) Relevé topographique de la bille en acier après le dépôt du revêtement DLC. La rugosité RMS vaut en moyenne 16,7 nm et la surface présente des aspérités visibles dont les plus hautes sont de plusieurs micromètres. c) Relevé topographique du disque en Quartz avant le dépôt du revêtement DLC. La rugosité RMS vaut en moyenne 8,1 nm et la surface ne présente pas d'aspérités visibles. d) Relevé topographique du disque en Quartz après le dépôt du revêtement DLC. La rugosité RMS vaut en moyenne 8,6 nm et la surface ne présente pas d'aspérités visibles.

La rugosité du disque avant et après dépôt DLC est de l'ordre de 8 nm et aucune altération de la surface par le procédé de déposition n'est constatée. En revanche, la rugosité de la bille après dépôt DLC est de l'ordre de 17 nm et une altération de la surface par le procédé de déposition est constatée. Après dépôt du revêtement sur la bille, des aspérités de DLC, dont les plus hautes sont de quelques microns, apparaissent à la surface du disque. Malgré l'observation régulière de ces aspérités de DLC, aucune information précise n'est mentionnée pour permettre d'expliquer l'apparition de ces excroissances. Ces aspérités peuvent être causées par une mauvaise préparation de la surface avant le procédé de déposition, ou bien encore par le procédé lui-même qui engendre des poussières venant se déposer sur la surface du substrat. Expérimentalement, la hauteur des aspérités de DLC est proportionnelle à l'épaisseur de la couche de DLC. Ainsi, plus le revêtement DLC est épais, plus la concentration et la hauteur des aspérités sont élevées. Ceci explique l'absence de ces aspérités à la surface du disque.

La bille revêtue DLC est polie après dépôt afin d'éliminer au mieux les aspérités qui, une fois en contact avec la surface du disque lors d'un essai tribologique, risqueraient de le rayer et de

l'endommager sévèrement. Le produit de polissage est constitué d'un mélange de 50 g d'huile de base 150NS avec 5 g de pâte diamantée pour polissage (la taille moyenne des particules est de 0,1  $\mu\text{m}$ ). Le mélange ainsi obtenu est alors utilisé pour le polissage de la bille avec plusieurs cycles de vitesse allant du roulement pur au glissement pur, pendant 1900 secondes et sous 10 N de charge normale. Ce procédé permet alors de supprimer complètement les aspérités de DLC et de rendre poli miroir l'état de surface général de la bille DLC (Figure 43).



*Figure 43 : Relevé topographique de la bille en acier revêtue DLC après polissage. La rugosité RMS vaut en moyenne 11,9 nm et la surface ne présente plus d'aspérités visibles*

#### 2.4.6. Récapitulatif des caractéristiques des dépôts réalisés

La Table 8 regroupe l'ensemble des résultats de mesure concernant la caractérisation des revêtements DLC de la bille et du disque.

Caractéristiques	Bille ( $\varnothing$ 19,05 mm)	Disque ( $\varnothing$ 60 mm)
Épaisseur	2,2 $\mu\text{m}$ de DLC	90 nm de DLC
Optique	DLC complètement opaque	Transmission $\approx$ 28 % Réflexion $\approx$ 25 %
Adhérence	Très bonne (rupture du dépôt seul)	Très bonne
Mécanique	Dureté de 3 000 Hv Module d'élasticité de 120 GPa	Non mesurable
Topographique (avant dépôt)	Rugosité RMS de 13,6 nm Pas d'aspérités	Rugosité RMS de 8,1 nm Pas d'aspérités
Topographique (après dépôt)	Rugosité RMS de 16,7 nm Aspérités de 3,4 $\mu\text{m}$	Rugosité RMS de 8,6 nm Pas d'aspérités
Topographique (après dépôt et polissage)	Rugosité de 11,9 nm Pas d'aspérités	Pas de polissage

*Table 8 : Tableau de synthèse concernant la caractérisation des couches minces de DLC réalisées sur la bille et le disque*

## 2.5. Conclusions

Les revêtements solides, de type Diamond-Like Carbon (DLC), sont connus pour leurs excellentes propriétés mécaniques et tribologiques, et sont de plus en plus utilisés pour des problématiques de réduction du frottement. Les DLC sont principalement constitués d'atomes de carbone se trouvant dans les deux états d'hybridation  $sp^2$  (graphite) et  $sp^3$  (diamant) et donnant naissance à une structure amorphe de la couche. Les couches obtenues sont des revêtements métastables, qui diffèrent par leurs propriétés physico-chimiques et leur composition. On distingue traditionnellement quatre grandes familles de DLC : le carbone amorphe (a-C), le carbone amorphe hydrogéné (a-C:H), le carbone amorphe tétraédrique (ta-C) et le carbone amorphe tétraédrique hydrogéné (ta-C:H).

Le DLC est déposé en couches minces par des techniques de dépôt sous vide. Les méthodes d'élaboration les plus couramment employées sont basées sur un principe permettant la génération d'une vapeur à base de carbone, qui interagit avec les surfaces à revêtir. Il existe principalement deux techniques pour déposer le DLC : les méthodes physiques par PVD (Physical Vapor Deposition) et les méthodes chimiques par CVD (Chemical Vapor Deposition). Les mécanismes de croissance des couches minces, bien identifiés, peuvent se décrire depuis l'échelle macroscopique (en termes de pression, de température et d'énergie) vers l'échelle atomique (qui fait intervenir les interactions élémentaires).

Dans le cadre de cette thèse, deux échantillons ont été revêtus de DLC par PACVD. Le premier substrat est une bille en acier et le second substrat un disque en Quartz. Une, ou plusieurs sous-couches d'accrochage entre le substrat et le revêtement de surface final sont appliquées par PVD afin de résoudre les problèmes d'adhérence et de compenser les contraintes résiduelles importantes présentes dans les DLC. L'ensemble de ces couches a ensuite été caractérisé pour qualifier et quantifier leur épaisseur, leurs propriétés optiques, leur adhérence, leurs propriétés mécaniques et morphologiques. Les deux échantillons ainsi réalisés vont nous permettre de comprendre l'influence ou l'impact des revêtements DLC sur les mécanismes de lubrification, en régimes stationnaires ou transitoires, représentatifs des conditions de la zone Segments-Piston-Chemise, pour des lubrifiants formulés ou non, neufs ou vieillis en fonctionnement.

# Chapitre 3

## Comportement tribologique du film interfacial en régime stationnaire

### Sommaire

3.1.	<i>Introduction</i> .....	77
3.2.	<i>Description du dispositif expérimental</i> .....	77
3.2.1.	Démarche scientifique .....	77
3.2.2.	Simulation expérimentale de la zone SPC.....	78
3.2.3.	Conditions tribologiques et protocole expérimental .....	79
3.2.4.	Description des lubrifiants .....	80
3.3.	<i>Mécanismes de formation du film lubrifiant</i> .....	83
3.3.1.	Procédure expérimentale .....	83
3.3.2.	Effet de la rhéologie du lubrifiant .....	84
3.3.3.	Effet de la nature de la surface .....	88
3.4.	<i>Comportement tribologique du lubrifiant</i> .....	89
3.4.1.	Procédure expérimentale .....	89
3.4.2.	Réponse en frottement.....	91
3.4.3.	Frottement en film complet et rhéologie sous pression .....	93
3.4.4.	Frottement en régime limite et effet de surface .....	97
3.5.	<i>Conclusions</i> .....	99

### 3.1. Introduction

Les chapitres 1 et 2 permettent de comprendre les problèmes tribologiques liés à l'utilisation d'un lubrifiant vieilli contenant des particules de suie, et de prendre conscience qu'il existe des moyens de lutte contre l'usure et le frottement tels que les revêtements DLC. L'objectif de ce chapitre est d'identifier les mécanismes de lubrification en régime stationnaire de plusieurs lubrifiants dont le lubrifiant formulé vieilli, et en particulier, d'étudier leur capacité à former un film séparant les surfaces et de mettre en évidence leur réponse en frottement en fonction des surfaces, revêtues DLC ou non.

La première partie de ce chapitre est consacrée à la description et au mode de fonctionnement du dispositif expérimental utilisé. Après une description précise des lubrifiants testés, nous présenterons dans la deuxième partie les mécanismes de formation du film lubrifiant à partir d'une série d'expérimentations effectuées avec différentes surfaces. La troisième partie montrera comment des expériences de traction et des courbes de Stribeck sont utilisées pour analyser l'impact du revêtement de surface de type DLC sur le comportement tribologique de l'interface lubrifiée. Une interprétation du frottement en film complet en termes de rhéologie sous pression sera proposée. Pour terminer, une modélisation du frottement en régime limite sera introduite pour discuter notamment des effets de surface.

### 3.2. Description du dispositif expérimental

#### 3.2.1. Démarche scientifique

Ce chapitre vise à comprendre le comportement tribologique du film interfacial en régime stationnaire pour des surfaces revêtues ou non de DLC à partir de mesures expérimentales. Pour y parvenir, il est naturellement possible d'utiliser des bancs d'essais moteurs qui permettent de mesurer les performances de nouvelles solutions technologiques telles que des composants moteurs revêtus DLC ou même de nouveaux lubrifiants. Dans ce genre d'appareils, les mesures sont effectuées selon des protocoles préétablis ou des protocoles d'essais spécifiques mais ne permettent pas d'accéder finement à l'interface du contact lubrifié. C'est pourquoi l'utilisation de tribomètres spécifiques est nécessaire pour la compréhension et l'analyse, *in situ*, des phénomènes mis en jeu au sein d'une interface lubrifiée.

Sur ces tribomètres de laboratoire, les conditions tribologiques du contact telles que les vitesses des solides, les pressions de contact ainsi que la température peuvent être assez éloignées des conditions réelles. Ainsi, les vitesses de glissement d'un contact Segments-Chemise, de l'ordre de plusieurs dizaines de m/s ne pourront pas être atteintes mais il est tout de même possible de se rapprocher des conditions réelles de l'application. Malgré ces limites techniques, il est tout à fait envisageable de déterminer les mécanismes mis en jeu dans les contacts lubrifiés à l'échelle de ces appareils et qui sont susceptibles d'être similaires à ceux qui entrent en jeu à l'échelle industrielle.

Afin d'améliorer notre compréhension fondamentale des phénomènes qui s'établissent dans un contact lubrifié, les simulations expérimentales sont effectuées pour plusieurs conditions tribologiques contrôlées sur le tribomètre IRIS, dont les caractéristiques seront détaillées dans le paragraphe 3.2.2. La caractéristique principale de ce tribomètre réside dans la mesure simultanée des forces de contact avec des cinématiques parfaitement contrôlées tout en permettant l'observation directe et simultanée du film interfacial grâce à une technologie

d'imagerie à large résolution spatiale ou à grande vitesse d'acquisition. Ce dispositif nous permet, entre autres, d'étudier l'influence des particules de suie sur la capacité de formation du film lubrifiant et les propriétés de frottement des lubrifiants avec diverses surfaces en contact.

À partir de l'analyse approfondie de la lubrification des moteurs Diesel en présence de particules solides de suie réalisée au chapitre 1, de l'élaboration et de la caractérisation des surfaces revêtues au chapitre 2, la démarche expérimentale scientifique proposée va nous permettre de vérifier si l'optimisation des surfaces en contact grâce à un revêtement de type DLC est susceptible d'améliorer les conditions de lubrification de l'interface avec des lubrifiants vieillis contenant des particules de suie. Nous chercherons également à comprendre l'influence des interactions surfaces/cinématiques/lubrifiants (additifs+particules) sur les mécanismes de frottement pour tous les régimes de lubrification en conditions stationnaires dans ce chapitre.

### **3.2.2. Simulation expérimentale de la zone SPC**

Le tribomètre IRIS (Figure 44), développé au LTDS, réalise un contact lubrifié entre une sphère et un disque en Quartz transparent semi-réfléchissant. La cavité optique formée entre les deux solides est utilisée pour mesurer la distribution spatiale d'épaisseur de film lubrifiant dans une gamme allant de quelques nanomètres à environ 500 nm (avec une résolution de  $\pm 2$  nm) par interférométrie. Une caméra CCD à temps d'exposition court, de quelques  $\mu$ s, ayant une résolution spatiale inférieure au  $\mu$ m permet de capturer des interférogrammes précis du contact. Il est également possible de suivre la formation et le déplacement d'agrégats, à travers et autour du contact, avec une caméra CMOS numérique rapide (jusqu'à 160 000 images/s) qui dispose d'une résolution spatiale d'environ 2  $\mu$ m. Deux moteurs synchrones brushless produisent le mouvement de rotation indépendant et simultané des deux solides (bille, disque). La vitesse, ainsi que la position de chaque solide, est précisément et individuellement contrôlée à haute fréquence avec une résolution de 100 000 points par rotation.

Les conditions de roulement pur sont obtenues lorsque les vitesses des deux solides sont égales en leur point de contact. L'introduction d'une différence entre ces deux vitesses provoque un glissement entre les solides ce qui permet d'effectuer des expériences de frottement. Ainsi, en variant la vitesse linéaire des surfaces entre 0,5 mm/s et 1 m/s, cet appareil peut alors générer une multitude de cinématiques de contact. Un capteur d'effort statique mesure en continu la charge normale appliquée au contact mécanique dans la gamme de 0 à 100 N  $\pm$  1 N. Un capteur de couple placé entre le disque et le moteur brushless mesure le couple de frottement jusqu'à  $\pm 2$  Nm  $\pm$  2.10<sup>-4</sup> Nm. Les capteurs sont tous connectés à des amplificateurs électroniques dédiés. Le bruit obtenu avec ce système est aussi faible que 1 N à 1 KHz sur la force normale et 0,05 N à 1 KHz sur la force tangentielle.

La bille peut être en partie immergée dans un réservoir contenant quelques millilitres de fluide. Un système de chauffage indépendant constitué d'une cartouche chauffante peut également augmenter la température du contact lubrifié jusqu'à 150 °C  $\pm$  1 °C. Il est régulé en boucle fermée à partir de la valeur mesurée par le thermocouple sans mise en contact avec les solides. L'acquisition simultanée de la vidéo de la zone de contact, de la cinématique des moteurs, des mesures d'efforts et de la température est entièrement réalisée par ordinateur et permet une synchronisation de tous les signaux. Les données sont ensuite extraites du fichier enregistré.

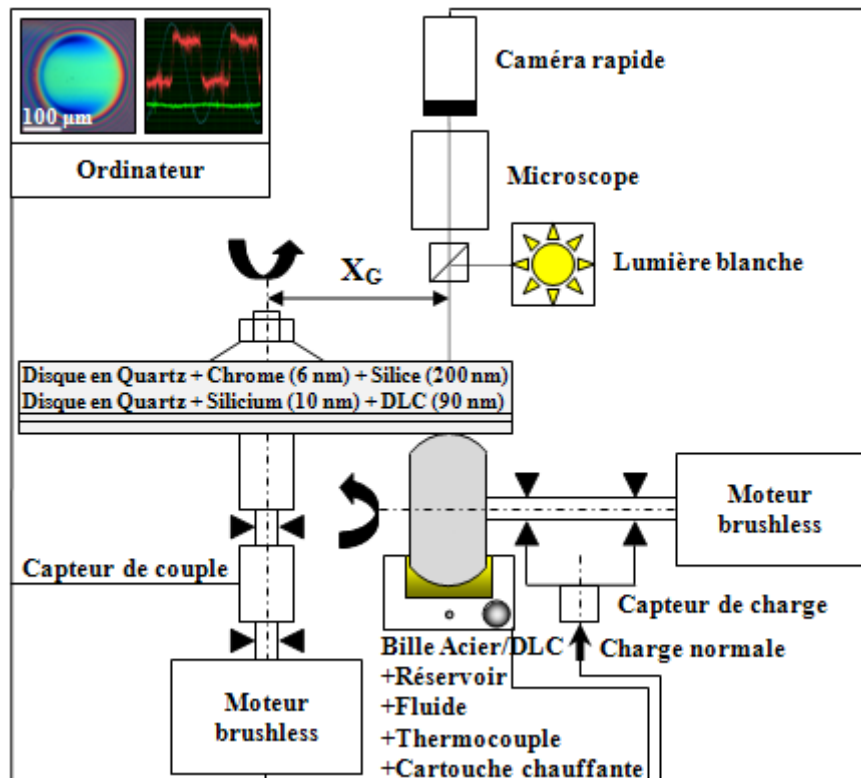


Figure 44 : Diagramme schématique du tribomètre IRIS

### 3.2.3. Conditions tribologiques et protocole expérimental

Un contact lubrifié a été établi entre une bille et un disque dont les caractéristiques physico-chimiques, mécaniques et morphologiques sont détaillées au chapitre 2. Les expériences sont menées à température ambiante et la charge normale est maintenue constante à 15 N. Ceci conduit à un diamètre de contact de Hertz de 250  $\mu\text{m}$  et une pression de contact moyenne résultante de 305 MPa en tenant compte des propriétés élastiques des deux solides, rappelées dans la Table 9.

	$R$ (mm)	$RMS$ (nm)	$E$ (GPa)	$\nu$
Bille Acier ou DLC	9,525	10	210	0,30
Disque Silice ou DLC	$\infty$	5	70	0,17

Table 9 : Propriétés géométriques et élastiques des billes et des disques

Avant chaque essai, les billes sont toujours polies à température ambiante pendant une demi-heure sous une charge normale de 1 N avec une suspension diamantée (la taille moyenne des particules est de 0,1  $\mu\text{m}$ ). Cette procédure permet d'obtenir une rugosité RMS de la bille inférieure à 10 nm d'après les mesures faites avec un profilomètre tactile dont le rayon de courbure de la pointe vaut 50 nm. La rugosité RMS du disque de silice (et de celui revêtu DLC) n'excède pas 5 nm d'après des mesures obtenues eu profilométrie optique. On accorde une importance toute particulière à la propreté de la bille et du disque avant l'essai. Ainsi, la bille et le disque sont successivement nettoyés avec de l'heptane et du propanol dans un bain à ultrasons pendant 10 min, puis immédiatement séchés avec de l'azote.



À partir de la vitesse de la bille et du disque, trois autres paramètres peuvent être définis afin de caractériser au mieux la cinématique des contacts lubrifiés :

$$U_E = \frac{1}{2}(U_B + U_D) \quad (17)$$

$$U_S = U_B - U_D \quad (18)$$

$$S_{RR} = \frac{U_S}{U_E} = \frac{2 * (U_B - U_D)}{U_B + U_D} \quad (19)$$

avec :

$U_B$  est la vitesse de la bille [m/s],

$U_D$  est la vitesse du disque [m/s],

$U_E$  est la vitesse d'entraînement moyenne [m/s],

$U_S$  est la vitesse de glissement [m/s],

$S_{RR}$  est le taux de roulement/glissement [-].

### 3.2.4. Description des lubrifiants

Plusieurs lubrifiants, simples et formulés, ont été utilisés dans le cadre de cette thèse. Il s'agit d'une huile de base minérale, d'une huile formulée neuve et d'une huile formulée vieillie contenant des particules de suie.

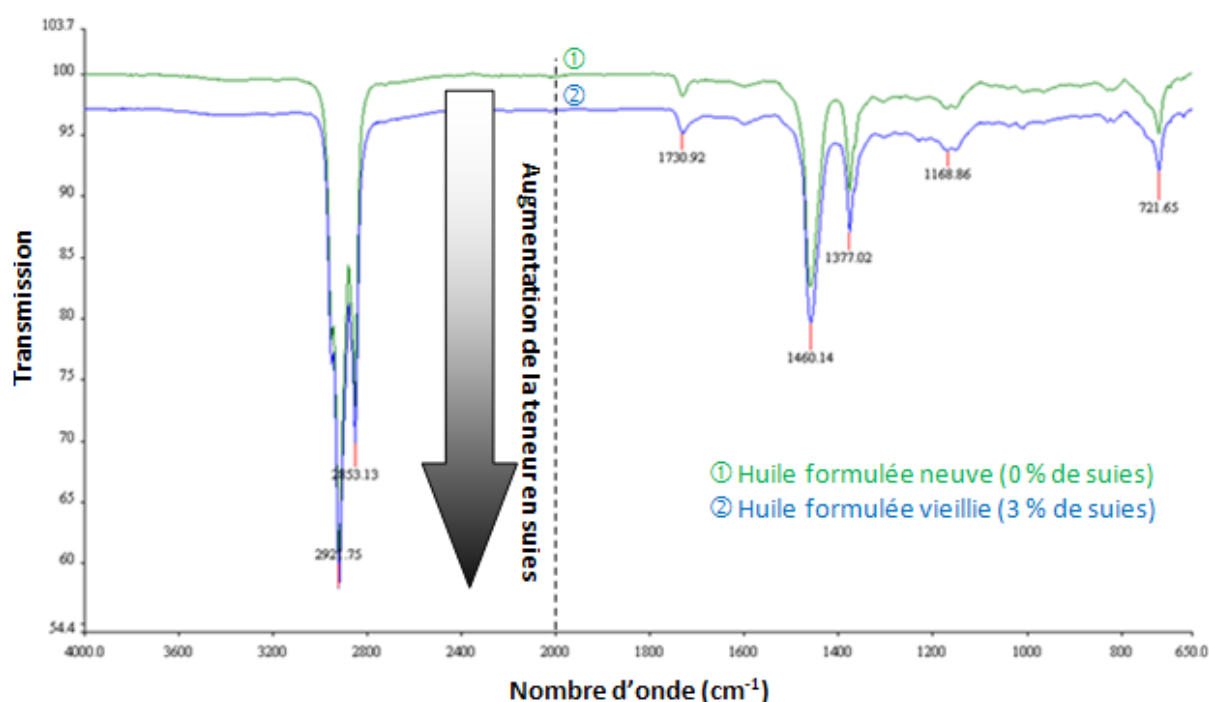
L'huile de base minérale, une 175NS, possède une viscosité dynamique de 62 mPa.s à 25 °C, de 29 mPa.s à 40 °C et de 9 mPa.s à 80 °C. La valeur du coefficient de piézoviscosité est de 24 GPa<sup>-1</sup> ± 0,5 GPa<sup>-1</sup> et sa densité à 15 °C est de 0,87. Son indice de réfraction est égal à 1,48 et sa constante diélectrique est de 2,188 à 20 °C [24]. La masse molaire de l'huile 175NS est de 416g.mol<sup>-1</sup> et se compose de 4,30 % de carbones aromatiques, de 68,85 % de carbones paraffiniques et de 26,85 % de carbones naphéniques. Son taux de soufre est d'environ 0,55 % en masse. Les expériences effectuées sur ce produit ont pour but d'obtenir une signature tribologique de référence d'un lubrifiant simple ne contenant aucun additif, polymère modificateur de viscosité ou dispersant.

Outre ce lubrifiant simple, une huile entièrement formulée neuve, c'est-à-dire un mélange complexe d'une base, à laquelle sont ajoutés des additifs (dispersants, polymères de viscosité, détergents, etc.) a été utilisée. Il s'agit d'une huile commerciale multigrade (15W40) qui possède une viscosité dynamique de 212 mPa.s à 25 °C, de 115 mPa.s à 40 °C et de 27 mPa.s à 80 °C. La valeur du coefficient de piézoviscosité est de 25 GPa<sup>-1</sup> ± 0,5 GPa<sup>-1</sup> [24]. Son indice de réfraction est égal à 1,6 et sa constante diélectrique est de 2,5 à 20 °C.

Afin d'identifier l'influence du couplage additifs de lubrification, particules de suie et surfaces fonctionnelles carbonées dans les différents régimes de lubrification du contact SPC, une huile

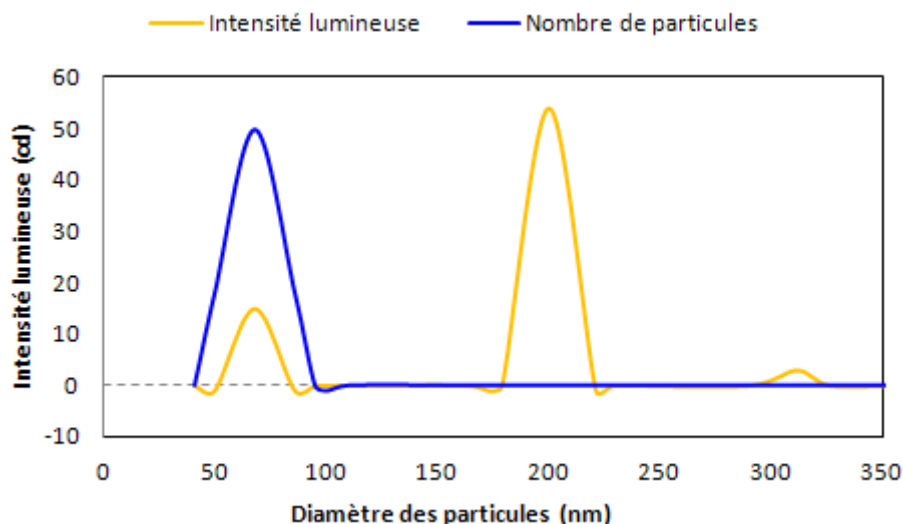
vieille a été utilisée. Pour obtenir ce lubrifiant, l'huile formulée neuve a subi un test sur un banc d'essais pour moteurs pendant une durée de 50 heures avec un moteur Diesel fonctionnant à pleine charge. La durée de l'essai correspond à la distance que parcourt le moteur entre deux vidanges. Ce test est destiné en partie à produire des huiles usées contenant des suies. L'huile est ensuite récupérée en vidangeant le carter moteur. Elle a la particularité de se charger en suies, résidus de combustion, qui peuvent s'agréger et provoquer l'usure des chemises moteur mais également de la distribution regroupant l'arbre à cames, les culbuteurs et les poussoirs. La viscosité dynamique de l'huile vieille ainsi obtenue est de 352 mPa.s à 25 °C, de 150 mPa.s à 40°C et de 35 mPa.s à 80 °C. La valeur du coefficient de piézoviscosité est de  $23\text{GPa}^{-1} \pm 0,5\text{GPa}^{-1}$ . Son indice de réfraction est égal à 1,75 et sa constante diélectrique est de 3,17 à 20 °C [24].

Pour compléter l'étude sur les propriétés physico-chimiques des lubrifiants, une mesure effectuée par spectroscopie infrarouge (Figure 45) révèle la présence de suies dont la concentration en masse atteint 3 % pour l'huile vieille. La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR, pour Fourier-Transform InfraRed spectroscopy) mesure les concentrations de groupes de constituants et permet l'identification de familles caractéristiques ainsi que des liaisons d'une molécule à l'aide du nombre d'onde correspondant. Les suies n'ayant pas de fréquence spécifique d'absorption dans le spectre infrarouge, elles provoquent un déplacement de la ligne de base du spectre due à l'absorption et à la diffusion de la lumière. Le décalage vertical provoqué par les suies est affecté par la quantité de suies présentes et par la taille effective des particules. Comme il n'y a pas d'autres caractéristiques spectrales dans la région à  $2000\text{ cm}^{-1}$ , cette zone est utilisée pour accéder au taux de suie dans un échantillon.



*Figure 45 : Spectroscopie infrarouge réalisée sur les lubrifiants formulés neuf et vieilli. Le lubrifiant formulé neuf ne contient pas de particules de suie et sert de référence. Le spectre infrarouge du lubrifiant formulé vieilli est décalé vers le bas en fonction de la concentration en particules de suie qu'il contient, 3 % en l'occurrence, pour ces échantillons*

Une mesure de la taille de ces particules de suie (Figure 46), présentes dans le lubrifiant vieilli, a ensuite été réalisée grâce à une analyse de diffusion dynamique de la lumière (DLS, pour Dynamic Light Scattering) au Centre de Recherche de Solaize (CReS) de Total. Cette technique d'analyse spectroscopique non destructive permet d'accéder à la taille des particules en suspension dans un liquide, de 1 à 500 nm de diamètre environ. La mesure montre que le lubrifiant vieilli contient majoritairement des particules dont le diamètre est d'environ 68 nm. Cette taille des particules est parfaitement représentative de la taille des particules de suie présentes habituellement dans un lubrifiant vieilli.



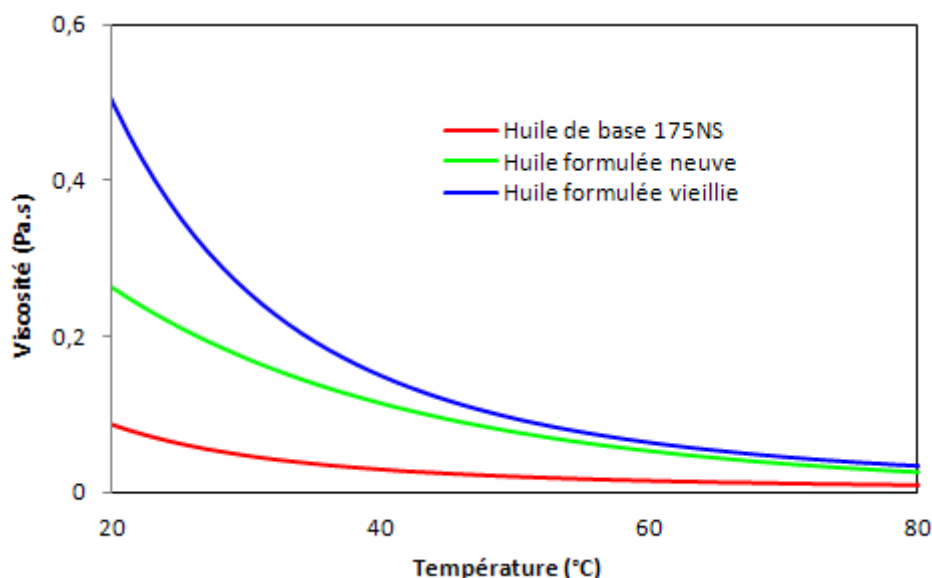
*Figure 46 : Analyse de diffusion dynamique de la lumière pour le lubrifiant vieilli. Des particules de suie, dont le diamètre est d'environ 68 nm, sont présentes en quantité dans le lubrifiant. Mesure réalisée au CReS-Total*

La viscosité de l'ensemble des lubrifiants peut être estimée en fonction de la température (Figure 47) en utilisant la relation de Vogel [3] à partir des mesures rhéologiques effectuées à trois températures de référence (ambiante, 40 °C et 80 °C). La relation de Vogel donne, à l'heure actuelle, la meilleure approximation de l'évolution de la viscosité en fonction de la température.

$$\eta = a * e^{\left(\frac{b}{T-c}\right)} \quad (20)$$

avec :

- $\eta$  est la viscosité du lubrifiant à la température T [Pa.s],
- T est la température [K],
- a est une constante déterminée à partir de points expérimentaux [Pa.s],
- b est une constante déterminée à partir de points expérimentaux [K],
- c est une constante déterminée à partir de points expérimentaux [K].



*Figure 47 : Évolution de la viscosité en fonction de la température pour l'ensemble des lubrifiants. Ajustement de la courbe en utilisant la relation de Vogel à partir des points expérimentaux*

### 3.3. Mécanismes de formation du film lubrifiant

#### 3.3.1. Procédure expérimentale

Lors d'une expérience de roulement pur, la vitesse d'entraînement,  $U_e$ , varie par paliers successifs de 1 à 800 mm/s et la vitesse de glissement,  $U_s$ , est maintenue égale à 0, ce qui permet d'observer l'établissement du film et d'identifier ses mécanismes de formation (Figure 48). L'analyse du contact par imagerie montre un changement de couleur de l'interférogramme de contact lorsque la vitesse d'entraînement évolue au cours du temps. Après calibration, les couleurs sont associées à des épaisseurs de film d'huile : l'épaisseur varie, entre autres, avec la vitesse d'entraînement. La résolution de Hamrock-Dowson [101] permet de quantifier la dépendance de l'épaisseur du film d'huile avec la viscosité du lubrifiant et de son coefficient de piézoviscosité.

Aux faibles vitesses d'entraînement et pour des lubrifiants de faible viscosité, la portance générée n'est pas suffisante pour complètement séparer les surfaces et des contacts entre les aspérités des solides peuvent se produire pour supporter la charge. L'épaisseur de film reste mince, de l'ordre de quelques nm. Aux fortes vitesses d'entraînement, la portance générée est telle que les surfaces des solides sont complètement séparées par un film d'huile. C'est donc le lubrifiant qui va supporter la pression à l'interface et empêcher tout contact entre les aspérités des deux surfaces solides. Dans ce régime, dit EHD, ce sont principalement les propriétés rhéologiques du fluide à l'entrée du contact, plus précisément dans le convergent, qui gouvernent l'épaisseur.

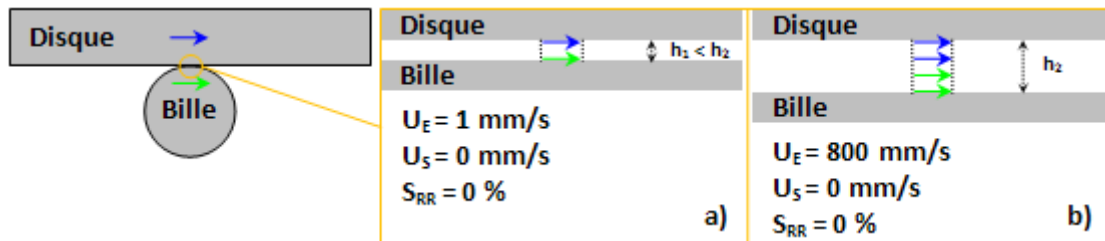


Figure 48 : Profils de vitesse du lubrifiant lors d'une expérience de roulement pur. La figure a) schématise les conditions cinématiques initiales, et la figure b) les conditions cinématiques finales. Ces expériences sont réalisées en faisant varier la vitesse d'entraînement (de 1 à 800 mm/s) sans cisailer le film lubrifiant, c'est-à-dire sans introduire de glissement relatif entre la bille et le disque. Elles permettent de mesurer l'évolution de l'épaisseur du film lubrifiant en fonction de la vitesse d'entraînement et d'étudier les mécanismes de formation du film d'huile

### 3.3.2. Effet de la rhéologie du lubrifiant

Dans cette partie, les expériences ont toutes été réalisées pour un contact entre une bille en acier et un disque en silice. Seul le lubrifiant varie.

L'objectif de ces expériences est double : d'une part, il s'agit de mesurer l'épaisseur de film pour l'huile de base 175NS, l'huile formulée neuve et vieillie, et d'autre part de visualiser la formation possible d'agrégats dans des conditions de roulement pur. La Figure 49 présente l'évolution de l'épaisseur centrale du film en fonction de  $\eta_0 \cdot U_E$  pour les trois lubrifiants, où  $\eta_0$  est la viscosité dynamique des lubrifiants sous cisaillement nul.

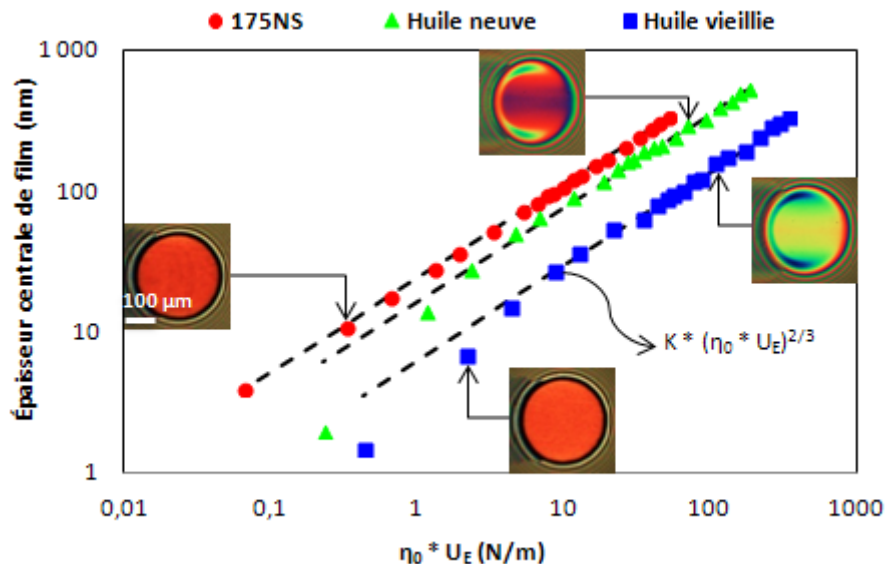


Figure 49 : Évolution de l'épaisseur du film d'huile en fonction du produit  $\eta_0 \cdot U_E$  pour les trois lubrifiants où  $\eta_0$  est la viscosité du lubrifiant à pression atmosphérique et à la température de l'expérience. Les lignes discontinues correspondent à la prédiction de Hamrock-Dowson. Le décalage vertical des courbes en représentation logarithmique ne peut s'expliquer seulement par la variation du coefficient de piézo-viscosité entre les différentes huiles. Les interférogrammes de contact montrent qu'aucun phénomène d'agrégation ne se produit dans le contact lubrifié Acier/Silice (dont le diamètre de contact est de 250  $\mu\text{m}$ )

Pour une vitesse d'entraînement moyenne supérieure à 10 mm/s, l'épaisseur centrale de film des trois lubrifiants augmente avec la vitesse d'entraînement selon une loi puissance d'exposant 2/3. Ces lubrifiants présentent un comportement similaire et obéissent à la prédiction de Hamrock-Dowson [101]. Le coefficient de piézoviscosité des lubrifiants neuf et vieilli étant comparables à celui de l'huile de base, le décalage vertical des courbes pour l'huile neuve et l'huile vieilli, visible sur la Figure 49, signifie que l'évolution de l'épaisseur du film ne peut pas être décrite en utilisant la viscosité à pression atmosphérique,  $\eta_0$ , et à cisaillement nul du lubrifiant mesurée à la même température et à faible taux de cisaillement. Les épaisseurs mesurées sont ainsi toutes inférieures à celles prédites par le modèle de Hamrock-Dowson, excepté pour l'huile de base. De plus, aucun phénomène de sous-alimentation ni d'agrégation dans la zone de convergence qui pourrait expliquer cette diminution d'épaisseur du film lubrifiant n'est observée sur les interférogrammes de contact.

Par conséquent, pour l'huile neuve et l'huile vieilli, l'évolution de l'épaisseur du film dans le contact lubrifié en fonction de la vitesse d'entraînement peut être décrite en utilisant une viscosité effective,  $\eta_{\text{eff}}$ , spécifique à chaque lubrifiant dans la zone de convergence. Celle-ci correspond à la valeur nécessaire pour ajuster la courbe calculée avec la formule de Hamrock-Dowson à la courbe expérimentale. Comme le montre la Figure 50, les courbes présentant l'évolution de l'épaisseur du film lubrifiant en fonction du produit  $\eta_{\text{eff}} * U_E$  sont superposables. Les coefficients de piézoviscosité des trois lubrifiants étant très proches, le décalage que l'on observe entre les trois courbes reste dans l'incertitude de la mesure de l'épaisseur.

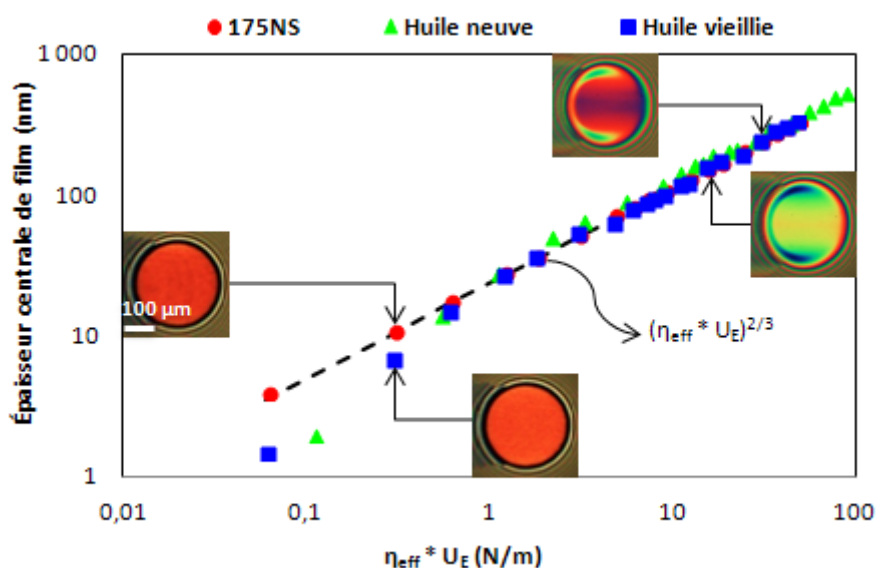


Figure 50 : Évolution de l'épaisseur du film d'huile en fonction du produit  $\eta_{\text{eff}} * U_E$  pour les trois lubrifiants. Les lignes discontinues correspondent à la prédiction de Hamrock-Dowson en utilisant une viscosité effective spécifique à chaque lubrifiant. L'ensemble des courbes se superposent dans cette configuration

La viscosité effective de l'huile de base est alors égale à 0,062 Pa.s. Cette valeur est proche de la viscosité à pression atmosphérique de l'huile de base,  $\eta_0$ , qui est mesurée à 0,065 Pa.s à 24 °C (cf. Table 10). La viscosité effective de l'huile neuve est égale à 0,110 Pa.s. Cette valeur est

environ deux fois plus faible que la viscosité à pression atmosphérique de l'huile neuve,  $\eta_0$ , qui est mesurée à 0,230 Pa.s à 22 °C. De même, la viscosité effective de l'huile usée est égale à 0,060 Pa.s, et est environ 7 fois plus faible que la viscosité à pression atmosphérique de l'huile vieillie,  $\eta_0$ , qui est estimée à 0,431 Pa.s pour une température de 22 °C en utilisant la relation de Vogel [3]. Ces valeurs sont résumées dans la Table 10.

	$\eta_0$ (Pa.s)	$\eta_{eff}$ (Pa.s)	$\eta_{eff} / \eta_0$	Température (°C)
<i>Huile de base 175NS</i>	0,065	0,062	1	24
<i>Huile formulée neuve</i>	0,230	0,110	0,48	22
<i>Huile formulée vieillie</i>	0,431	0,060	0,15	22

**Table 10 : Viscosités à pression atmosphérique,  $\eta_0$ , et viscosités effectives,  $\eta_{eff}$ , dans le convergent pour l'huile de base à 24 °C, pour l'huile formulée neuve et vieillie à 22 °C**

Pour les lubrifiants formulés neuf ou vieilli, la faible valeur de  $\eta_{eff}$  par rapport à  $\eta_0$  peut être attribuée soit à une rhéofluidification, en raison des forts taux de cisaillement dans le convergent qui provoquent la déformation des pelotes de polymère et leur alignement dans la direction du cisaillement [102], [103] soit à une séparation de phase au sein du contact [104].

Pour confirmer ou infirmer la première hypothèse, les mesures rhéologiques présentées sur la Figure 51 ont été effectuées sur un rhéomètre AR2000 cône/plan à 25 °C. Elles montrent l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement dans la gamme de  $10^{-2} - 10^4 \text{ s}^{-1}$  pour les trois lubrifiants.

Si la viscosité de l'huile de base reste indépendante du taux de cisaillement, les deux huiles formulées présentent un comportement rhéofluidifiant caractérisé par une forte diminution de la viscosité avec l'augmentation du taux de cisaillement. En supposant que l'écoulement visqueux de ces lubrifiants formulés suit une loi de Cross [11], la viscosité s'écrit alors pour une température donnée :

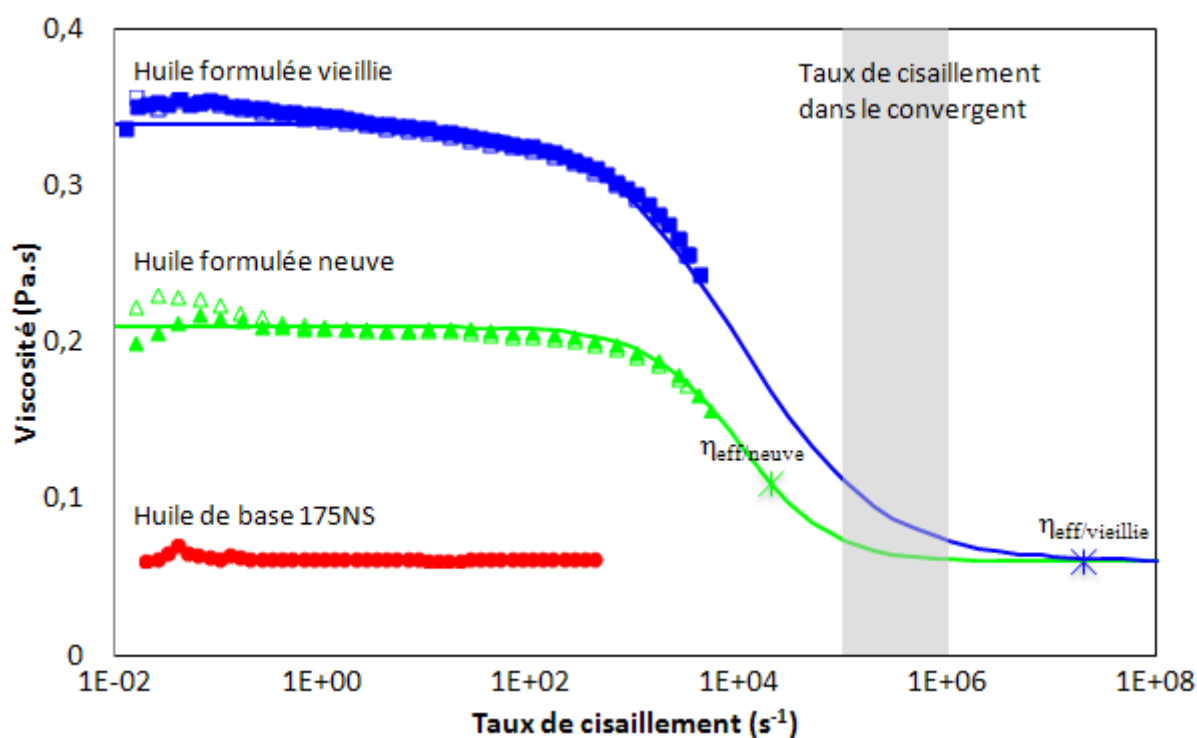
$$\eta = \eta_{\infty} + \frac{\eta_0 - \eta_{\infty}}{1 + \left[ \frac{\dot{\gamma}}{\dot{\gamma}_C} \right]^n} \quad (21)$$

avec  $\eta_0$  la viscosité à faible taux de cisaillement [Pa.s],  $\eta_{\infty}$  la viscosité à taux de cisaillement élevé [Pa.s],  $\dot{\gamma}_C$  le taux de cisaillement critique [ $\text{s}^{-1}$ ] et  $n$  un paramètre qui caractérise le gradient de viscosité avec le taux de cisaillement.

Dans notre cas, la viscosité à taux de cisaillement élevé,  $\eta_{\infty}$ , peut être assimilée à la viscosité de l'huile de base. La Figure 51 montre que le taux de cisaillement critique,  $\dot{\gamma}_C$ , à partir duquel la viscosité commence à diminuer, dépend de la présence de polymères, ou de la présence de polymères et d'agrégats de suie, respectivement dans le cas de l'huile formulée neuve ou vieillie. Les valeurs de  $\eta_{eff}$  sont également portées sur la Figure 51 : elles correspondent à un taux de cisaillement de  $2 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$  pour l'huile neuve, et  $2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$  pour l'huile vieillie. Pour un contact lubrifié en roulement pur, le taux de cisaillement a lieu dans le convergent et sa valeur moyenne

vaut  $U_E/h_c$ , avec  $h_c$  l'épaisseur centrale du film. Dans la gamme des conditions expérimentales testées dans ce travail, le taux de cisaillement peut être estimé à  $10^5 - 10^6 \text{ s}^{-1}$ , ce qui reste bien inférieur aux taux de cisaillement correspondant à la viscosité effective. Ainsi, l'interprétation d'une viscosité effective liée à un comportement rhéofluidifiant du lubrifiant ne semble pas pertinente.

Un autre phénomène physique, la séparation de phase, peut expliquer la faible viscosité effective par rapport à  $\eta_0$ . Les polymères peuvent s'adsorber sur les surfaces et former des couches épaisses. Cela semble peu probable et est confirmé par les interférogrammes de contact, homogènes et indépendants du temps, à faible vitesse d'entraînement. L'agglomération de pelotes de polymères dans le convergent créant un réseau moléculaire capable de filtrer l'huile est une autre explication possible. Pour l'huile neuve, le classement  $\eta_{\text{base}} < \eta_{\text{eff/neuve}} < \eta_{0/\text{neuve}}$  est compatible avec cette hypothèse. Dans le cas de l'huile vieillie, les suies peuvent s'agréger dans le convergent, les polymères peuvent s'adsorber sur leurs surfaces ce qui accélérerait le processus de filtration dans le convergent. Ceci est cohérent avec le classement :  $\eta_{\text{eff/vieillie}} \cong \eta_{\text{base}} < \eta_{0/\text{vieillie}}$ .



*Figure 51 : Évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les trois lubrifiants, mesurée avec un rhéomètre en utilisant une configuration cône/plan à 25 °C. Les deux huiles formulées montrent un comportement rhéofluidifiant. Les valeurs expérimentales (symbole) montrent que le comportement rhéofluidifiant de l'huile vieillie est plus accentué que celui de l'huile neuve à faible taux de cisaillement. La loi de Cross présentée ici (ligne continue) peut être utilisée pour modéliser l'effet rhéofluidifiant. Les valeurs de  $\eta_{\text{eff}}$  sont portées, et les ordres de grandeurs des taux de cisaillement dans la zone de convergence sont également indiqués*



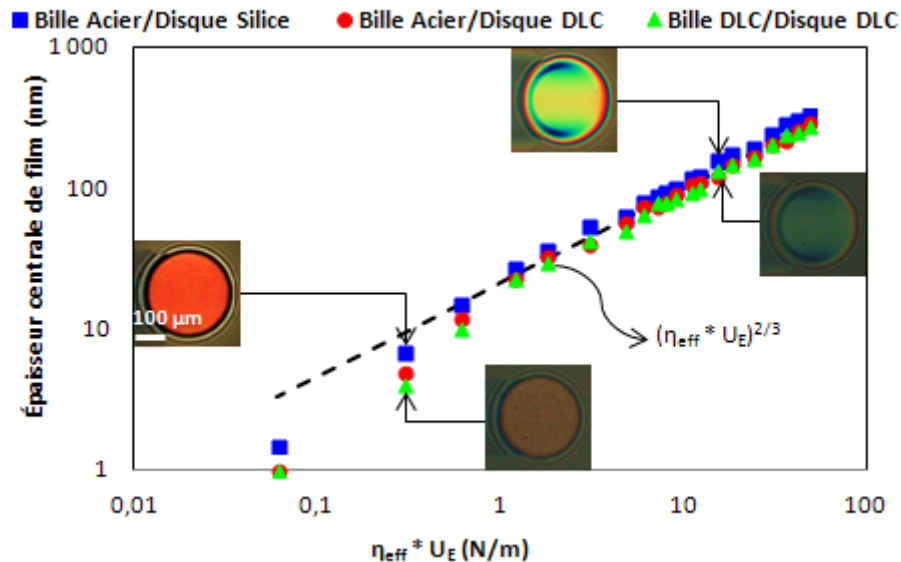
La Figure 49 et la Figure 50 montrent qu'en deçà d'une vitesse d'entraînement de 10 mm/s, l'épaisseur de film d'huile des lubrifiants formulés neuf et vieilli dévie de la courbe théorique et est plus faible que celle prédite par la résolution de l'équation de Reynolds avec un lubrifiant de viscosité  $\eta_{\text{eff}}$ . Ce résultat semble indiquer que les huiles formulées neuve et vieillie peuvent former des couches physisorbées sur les solides (bille, disque) : l'influence de ces couches ne peut pas être négligée lorsque l'épaisseur du film de lubrifiant atteint l'ordre de grandeur de l'épaisseur de ces couches adsorbées. La condition d'adhérence à la surface peut ne plus être complètement vraie, ce qui pourrait entraîner une diminution de l'épaisseur du film d'huile par rapport à la théorie [105].

En conclusion, les deux huiles formulées se comportent comme des fluides homogènes avec une viscosité effective caractéristique de l'écoulement de lubrifiant dans la zone de convergence inférieure à la viscosité apparente  $\eta_0$  du lubrifiant. Les mesures rhéologiques montrent un comportement rhéofluidifiant plus marqué pour l'huile vieillie que pour l'huile neuve. Cependant, la chute de viscosité observée sur les rhéogrammes se produit à des taux de cisaillement très différents de ceux qui règnent au sein du convergent : c'est pourquoi l'hypothèse d'une filtration au niveau du convergent est retenue pour expliquer l'existence et la faible valeur de la viscosité effective du lubrifiant dans le contact EHD. Néanmoins, nous n'avons pas observé de phénomène d'agrégation sous cisaillement dans la zone de convergence ou dans la zone de haute pression du contact.

### 3.3.3. Effet de la nature de la surface

On est désormais en droit de se poser la question suivante : que se passe-t-il lorsque la nature de la surface de la bille et du disque change ? Autrement dit, quel est l'impact des propriétés physico-chimiques des surfaces sur les mécanismes de formation du film d'huile ? En particulier, on peut s'interroger sur le rôle joué par les surfaces carbonées vis-à-vis du lubrifiant vieilli qui contient des particules de suie composées de carbone également.

La Figure 52 présente le résultat d'une expérience de roulement pur réalisée avec l'huile formulée vieillie où l'épaisseur du film lubrifiant est mesurée en fonction de  $\eta_{\text{eff}}^* U_E$  pour différents couples de surfaces : Acier/Silice, Acier/DLC et DLC/DLC avec  $\eta_{\text{eff}}$  indépendant des surfaces. Les lignes discontinues correspondent à la prédiction de Hamrock-Dowson en utilisant la viscosité effective calculée précédemment pour l'huile vieillie et le couple de surface Bille Acier/Disque Silice.



*Figure 52 : Évolution de l'épaisseur du film d'huile en fonction du produit  $\eta_{eff} * U_E$  réalisée à 23°C pour le couple Bille Acier/Disque Silice et à 26 °C pour les couples Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC. La ligne discontinue correspond à la prédiction de Hamrock-Dowson en utilisant une viscosité effective. La nature des surfaces en contact ne modifie pas la distribution du film lubrifiant en roulement pur. Les interféérogrammes de contact montrent qu'aucun phénomène d'aggrégation ne se produit dans les contacts lubrifiés (dont le diamètre de contact est de 250 μm)*

Pour un même lubrifiant, l'épaisseur centrale de film est comparable, indépendamment de la nature de la surface. De plus, nous n'avons pas observé de phénomène d'aggrégation ou l'apparition de sous-alimentation dans la zone de convergence. Ainsi, il semble qu'en roulement pur, le lubrifiant présente un comportement similaire, pour toutes les surfaces en contact considérées : les surfaces carbonées n'influencent pas les mécanismes de formation de film lubrifiant.

### 3.4. Comportement tribologique du lubrifiant

#### 3.4.1. Procédure expérimentale

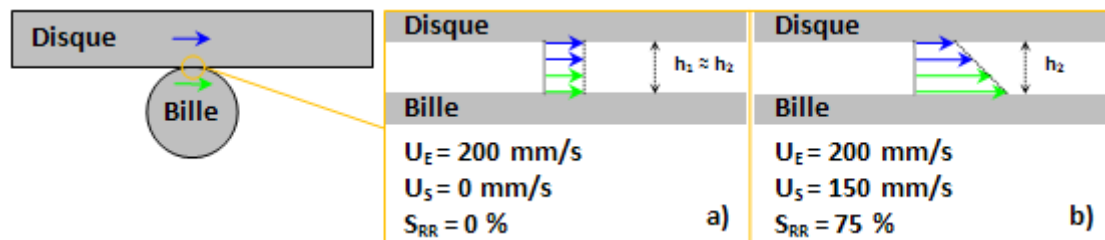
Deux expériences en régime stationnaire permettent de caractériser le comportement tribologique des huiles et de comparer les mécanismes de frottement dans les différents régimes de lubrification : celles permettant d'obtenir les courbes de traction, et celles permettant de réaliser les courbes de Stribeck.

##### 3.4.1.1. Courbes de traction

La mesure de la courbe de traction (Figure 53) s'effectue à vitesse d'entraînement moyenne constante et à taux de glissement variable. De ce fait, les expériences sont réalisées en conservant un débit constant de fluide à travers le contact. Il est alors possible de réaliser une multitude de courbes de traction selon le régime de lubrification souhaité.

Lors de nos expériences, la vitesse d'entraînement,  $U_E$ , est maintenue constante à 200 mm/s. L'expérimentation est arrêtée lorsque l'usure apparaît sur les interféérogrammes ou lorsque la

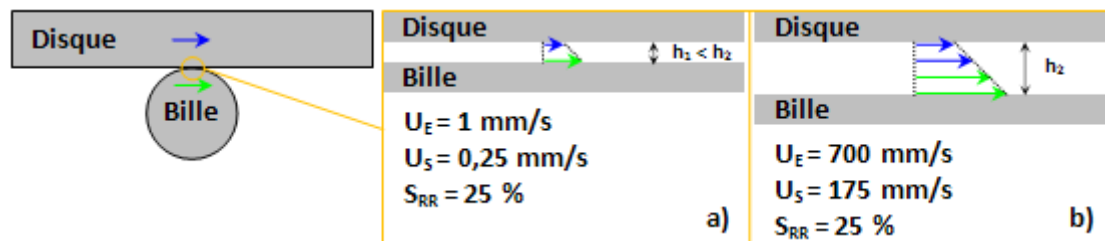
gamme des vitesses du tribomètre IRIS est atteinte sans apparition de sous-alimentation dans le contact. Dans ces conditions, la vitesse de glissement est augmentée par paliers successifs. Le taux de glissement varie ainsi de 0 à 75 %. La mesure de l'épaisseur, sensiblement constante au cours de nos expériences pour l'ensemble des lubrifiants étudiés, permet d'accéder au taux de cisaillement moyen dans le contact. La mesure simultanée de la force de frottement conduit à la contrainte de cisaillement interfaciale, puisque l'aire de contact est également mesurée.



*Figure 53 : Profil de vitesse du lubrifiant lors d'une expérience de traction. La figure a) schématise les conditions cinématiques initiales, et la figure b) les conditions cinématiques finales. Ces expériences sont réalisées en maintenant constante la vitesse d'entraînement à 200 mm/s tout en faisant varier le taux de roulement-glisement de 0 % à 75 %. L'épaisseur et la force de frottement sont mesurées simultanément*

#### 3.4.1.2. Courbes de Stribeck

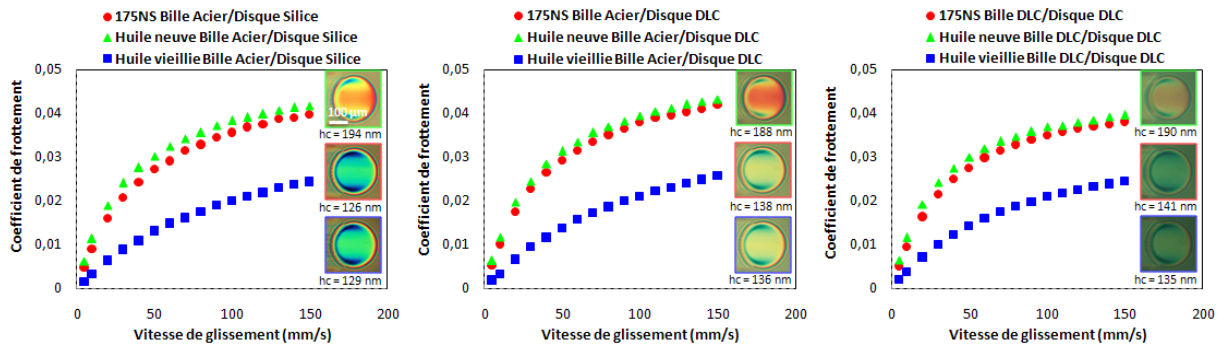
La courbe de Stribeck (Figure 54) est réalisée à taux de roulement-glisement constant :  $S_{RR}$  est fixé à 25 % tout au long de nos expériences. Par conséquent, la vitesse d'entraînement,  $U_E$ , et la vitesse de glissement,  $U_S$ , varient ce qui permet à la fois de faire évoluer l'épaisseur de film d'huile (grâce à  $U_E$ ) et le coefficient de frottement (grâce à  $U_S$ ) dans l'interface lubrifiée. Ces conditions permettent d'observer le comportement tribologique du lubrifiant en cisaillement pour différents régimes de lubrification et d'étudier les transitions entre ces régimes. Les trois principaux régimes de lubrification (limite, mixte et EHD) peuvent ainsi être caractérisés par l'épaisseur relative du film de lubrifiant par rapport à la rugosité éventuellement déformée des surfaces. Aux petites vitesses d'entraînement, l'épaisseur du film lubrifiant est faible. Les valeurs du coefficient de frottement sont alors élevées et déterminées par les propriétés des surfaces ainsi que par les propriétés physico-chimiques des couches de molécules adsorbées. On parle alors de frottement limite/mixte. Aux grandes vitesses d'entraînement, les surfaces sont complètement séparées par un film d'huile. Le niveau de frottement est alors faible et déterminé par les propriétés visqueuses du lubrifiant [9].



*Figure 54 : Profils de vitesse du lubrifiant lors d'une expérience de roulement-glisement afin d'obtenir la courbe de Stribeck. La figure a) schématise les conditions cinématiques initiales, et la figure b) les conditions cinématiques finales. Ces expériences sont réalisées en faisant varier la vitesse d'entraînement (de 1 à 700 mm/s) tout en maintenant constant le taux de roulement-glisement à 25 %. L'épaisseur et la force de frottement sont mesurées simultanément. Lors de ces expériences, la force de frottement générée varie avec l'épaisseur de film d'huile ce qui permet d'explorer les trois régimes de lubrification (limite/mixte et EHD)*

### 3.4.2. Réponse en frottement

La Figure 55 présente l'évolution du coefficient de frottement en fonction de la vitesse de glissement pour les trois contacts (Bille Acier/Disque Silice, Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC) et pour les trois lubrifiants (huile de base 175NS, huile formulée neuve et huile formulée vieillie). Toutes les expériences de traction sont réalisées en film complet de lubrifiant séparant les surfaces, pour une vitesse d'entraînement maintenue constante à 200mm/s.



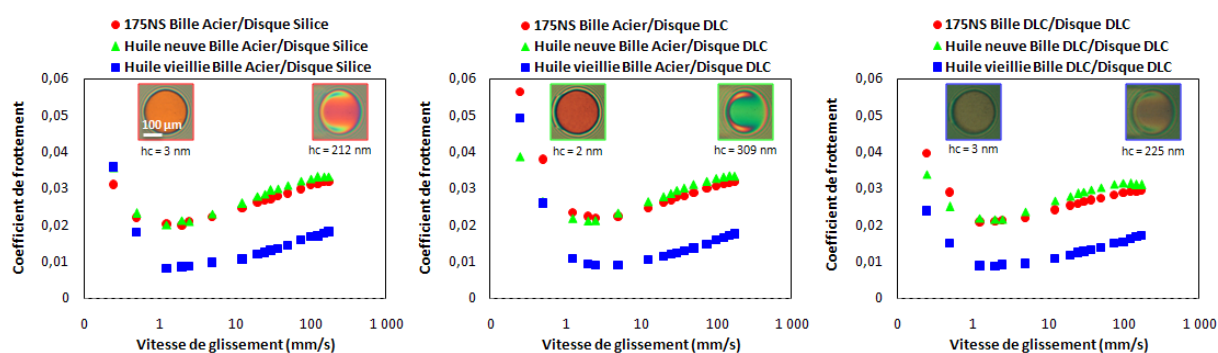
*Figure 55 : Évolution du coefficient de frottement en fonction de la vitesse de glissement pour les trois couples de surfaces et pour les trois lubrifiants à une température moyenne de 23 °C. L'épaisseur, présentée ici, est mesurée à l'aide des interférogrammes de contact pris à une vitesse de glissement de 150 mm/s. Les interférogrammes, montrent l'existence d'un film complet, pour tous les contacts et tous les lubrifiants testés. La vitesse d'entraînement est maintenue constante à 200 mm/s. Le coefficient de frottement croît linéairement avec la vitesse de glissement pour les faibles vitesses avant de s'incurver. Aucun effet des surfaces sur la force de frottement n'est mis en évidence dans ces expériences*

L'allure générale des courbes est identique : plus la vitesse de glissement augmente et plus le coefficient de frottement augmente. Le coefficient de frottement croît d'abord linéairement avec la vitesse de glissement pour les faibles vitesses avant de s'incurver. La gamme de vitesse étudiée ne permet pas d'atteindre une valeur stabilisée du frottement, pour les lubrifiants et les surfaces testées. La pente de la partie linéaire dépend de la nature du lubrifiant. Bien qu'ayant la viscosité *a priori* la plus élevée, l'huile formulée vieillie présente toujours le coefficient de frottement le plus faible, pour toutes les vitesses de glissement considérées. Le frottement obtenu pour l'huile de base 175NS, reste inférieur à celui obtenu pour l'huile formulée neuve. On constate que quelle que soit la nature de la surface, les courbes expérimentales de frottement sont superposables : aucun effet de la surface sur la force de frottement n'est détecté au cours de ces expériences. L'analyse couplée des interférogrammes de contact pour le couple Acier/Silice montre qu'en film complet, pour une vitesse de glissement de 150 mm/s, l'huile de base 175NS et l'huile formulée vieillie ont toutes les deux une épaisseur proche de 126 et 129nm. L'huile neuve présente une épaisseur plus élevée, proche de 194 nm. L'épaisseur de film d'huile reste indépendante de la nature des surfaces. Ces résultats sont conformes aux mesures d'épaisseur de film lubrifiant faites en roulement pur, sans glissement.

D'autres expériences de traction ont été menées pour des vitesses d'entraînement constantes de 5 mm/s pour lesquelles le régime de lubrification caractéristique est mixte/limite. Le même comportement des lubrifiants est observé : le coefficient de frottement croît linéairement avec la

vitesse de glissement pour les faibles vitesses avant de s'incurver, aucun effet des surfaces sur la force de frottement n'est mis en évidence dans ces expériences. Ces expériences nous renseignent sur trois points importants : d'abord, l'huile formulée vieillie présente un coefficient de frottement plus faible que les deux autres lubrifiants, contrairement à ce que laissent supposer leurs viscosités respectives, ensuite, quelle que soit l'épaisseur de film, il n'y a pas d'agrégats visibles, ni dans le convergent ni dans la zone de haute pression, et enfin, le fait que les surfaces non pas d'impact sur le comportement tribologique, ni en film complet de lubrifiant séparant les surfaces ni en film limite, semble indiquer que les effets thermiques sont négligeables.

Pour analyser plus précisément le comportement en frottement, des courbes de Stribeck [32], portées sur la Figure 56, ont été réalisées. En explorant précisément les trois régimes de lubrification (limite, mixte et EHD) elles permettent d'étudier l'effet d'éventuelles interactions entre les surfaces carbonées et les particules solides de suie sur la réponse tribologique de l'huile vieillie.



**Figure 56 : Courbes de Stribeck à  $S_{RR} = 25\%$  pour les trois couples de surfaces et pour les trois lubrifiants à une température moyenne de  $23\text{ }^{\circ}\text{C}$ . L'épaisseur, présentée ici, est mesurée à l'aide des interférogrammes de contact pris à une vitesse de glissement de  $250.10^3$  et  $100\text{ mm/s}$ . Aux fortes vitesses de glissement (dans le régime EHD), aucun effet des surfaces sur la force de frottement n'est mis en évidence. En revanche, aux faibles vitesses de glissement (dans le régime limite/mixte), les surfaces jouent un rôle sur le niveau de frottement**

La valeur du coefficient de frottement est tracée en fonction de la vitesse de glissement à un taux de glissement de  $25\%$ , pour les trois contacts (Bille Acier/Disque Silice, Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC) et pour les trois lubrifiants (base minérale 175NS, huile formulée neuve et huile formulée vieillie). Les courbes ont une allure caractéristique de la courbe de Stribeck :

- Pour une vitesse de glissement comprise entre la valeur minimale et  $2\text{ mm/s}$ , le régime de lubrification est limite/mixte et l'épaisseur centrale de film d'huile n'est plus suffisante pour assurer une portance hydrodynamique complète. Ce régime se traduit par une augmentation rapide du niveau de frottement même si celui-ci reste bien inférieur à  $0,25 \pm 0,05$ , valeur caractéristique du frottement solide Acier/Silice. La contrainte de cisaillement est due à une contribution purement visqueuse du lubrifiant mais également à une contribution solide due au frottement entre les surfaces, dont l'effet apparaît clairement dans ce régime. On note que les contacts DLC/DLC conduisent à un frottement faible, pour tous les lubrifiants.

- Les vitesses de glissement comprises entre 2 et 3 mm/s correspondent au minimum de la dissipation d'énergie et à l'équilibre entre frottement solide et frottement visqueux. En effet, cette plage correspond à une épaisseur optimale du film lubrifiant qui permet à la fois de séparer complètement les surfaces et de présenter le cisaillement interfacial le plus faible. Les transitions entre les différents régimes de lubrification sont très proches.

- Enfin pour des vitesses d'entraînement supérieures à 3 mm/s, l'épaisseur de film d'huile augmente et les surfaces sont complètement séparées par un film de plus en plus épais. Cette partie de la courbe correspond au régime EHD et le frottement résulte de la contribution de l'écoulement visqueux du lubrifiant sous pression et cisaillement. Le frottement augmente avec la vitesse de glissement. Dans cette gamme de vitesse, les courbes caractéristiques de frottement d'un lubrifiant sont superposables pour les trois types de contact et ne dépendent que du lubrifiant : la nature de la surface n'a aucun effet sur le comportement tribologique des lubrifiants dans ce régime.

En conclusion, les expériences de traction et de Stribeck ne mettent pas en évidence un effet des surfaces sur le processus de lubrification en film complet. En revanche, les courbes de Stribeck montrent logiquement un effet des surfaces dans le régime limite/mixte. Notamment, le couple de surface DLC/DLC génère les contraintes de cisaillement les plus faibles. Quel que soit le régime de lubrification, aucune formation d'agrégats n'est visible ni dans le contact EHD ni à l'entrée du contact dans la zone de convergence. Une interprétation de ces réponses en frottement est proposée dans les paragraphes suivants.

### 3.4.3. Frottement en film complet et rhéologie sous pression

Nous avons montré précédemment que la nature des surfaces considérées ne modifiait pas ou peu, ni l'établissement d'un film lubrifiant ni la réponse en frottement en film complet. De la connaissance de l'épaisseur centrale,  $h_c$ , et de la pression,  $P_{\text{moy}}$ , et à partir des courbes présentées en Figure 55, nous pouvons tracer des rhéogrammes (Figure 57)  $\tau = f(d\gamma/dt)$  caractéristiques de la rhéologie du film de lubrifiant confiné au sein du contact grâce aux relations suivantes :

$$\tau = \mu * P_{\text{moy}} \quad (22)$$

$$\dot{\gamma} = \frac{U_s}{h_c} \quad (23)$$

avec :

$\tau$  est la contrainte de cisaillement interfacial [Pa],

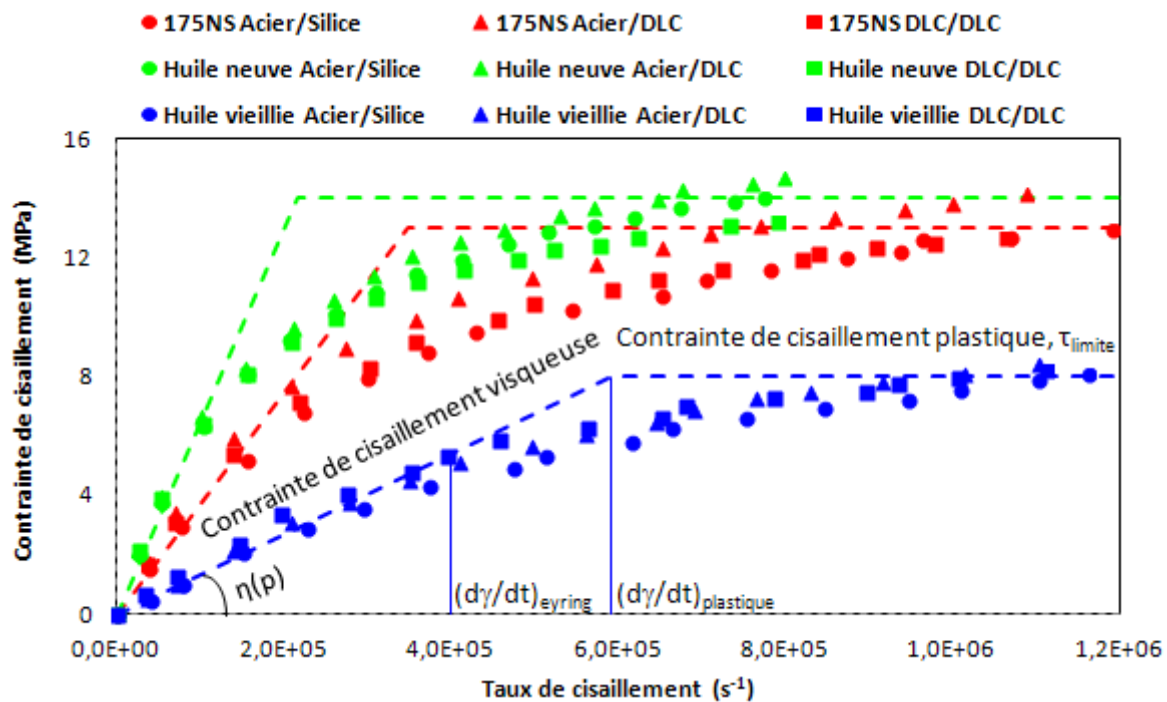
$\mu$  est le coefficient de frottement mesuré,

$P_{\text{moy}}$  est la pression moyenne mesurée dans le contact [Pa],

$\dot{\gamma} = \frac{d\gamma}{dt}$  est le taux de cisaillement [ $s^{-1}$ ],

$h_c$  est l'épaisseur centrale mesurée de film en roulement/glisement [m].

Les rhéogrammes ainsi obtenus pour un lubrifiant donné sont identiques pour tous les contacts.



*Figure 57 : Rhéogrammes issues d'une courbe de traction pour une vitesse d'entraînement de 200 mm/s. Ils sont caractéristiques du film de lubrifiant confiné sous pression au sein du contact. La contrainte de cisaillement augmente d'abord linéairement avec le taux de cisaillement jusqu'à une valeur critique qui dépend du lubrifiant et au-delà de laquelle les premiers effets non-Newtoniens apparaissent. Les rhéogrammes sont indépendants de la surface pour un lubrifiant donné*

Aux faibles taux de cisaillement, la contrainte de cisaillement augmente linéairement avec le taux de cisaillement. La pente, la valeur de  $(d\gamma/dt)_{\text{eyring}}$  au delà de laquelle la contrainte de cisaillement diverge de la pente linéaire, la valeur de  $(d\gamma/dt)_{\text{plastique}}$  au delà de laquelle la contrainte de cisaillement devient indépendante du taux de cisaillement et égale à  $\tau_{\text{limite}}$  sont mesurées pour chaque lubrifiant et leurs valeurs reportées dans la Table 11. La pente caractéristique de la période linéaire du rhéogramme permet de déterminer la viscosité Newtonienne du lubrifiant sous pression. Les valeurs de viscosité,  $\eta_0$ , et  $\eta_{\text{eff}}$  déterminées à partir des épaisseurs de film lubrifiant, sont également indiquées. Le calcul de la viscosité sous pression effectué à partir de la loi de Roelands avec la viscosité  $\eta_{\text{eff}}$  est proche de la pente linéaire des rhéogrammes. Cette analyse rhéologique issue des courbes de traction démontre que la viscosité effective du lubrifiant dans le convergent détermine la viscosité moyenne du lubrifiant sous pression dans le contact, confirmant ainsi le phénomène de filtration.



Lubrifiant	Huile de base 175NS	Huile formulée neuve	Huile formulée vieillie
<Température> [°C]	23,5	24,5	24
Pente $\eta(p)$ [Pa.s]	<b>51,5</b>	<b>64</b>	<b>17,2</b>
$(d\gamma/dt)_{\text{syring}}$ [s <sup>-1</sup> ]	1,8.10 <sup>5</sup>	1.10 <sup>5</sup>	4.10 <sup>5</sup>
$(d\gamma/dt)_{\text{plastique}}$ [s <sup>-1</sup> ]	2,5.10 <sup>5</sup>	2,16.10 <sup>5</sup>	4,6.10 <sup>5</sup>
$\tau_{\text{limite}}$ [MPa]	13	14	8
$\eta_0$ [Pa.s]	0,068	0,211	0,376
$\eta_{\text{eff}}$ [Pa.s]	0,068	0,101	0,058
$\alpha$ [GPa <sup>-1</sup> ]	24 ± 0,5	25 ± 0,5	23 ± 0,5
$\eta_{0/F}^*$ [Pa.s]	28 - 41	92 - 127	79 - 106
$\eta_{\text{eff}/F}^*$ [Pa.s]	<b>28 - 41</b>	<b>53 - 75</b>	<b>18 - 25</b>

\* Le calcul de la viscosité sous pression est effectué à partir de la loi de Roelands.

**Table 11 : Récapitulatif des données extraites des rhéogrammes sous pression**

Les courbes de Stribeck établies pour différentes surfaces et un ratio de roulement/glissement de 25 % confirment la différence de comportement visqueux entre les lubrifiants, en régime de film complet, pour des vitesses de glissement supérieures à 3 mm/s. Ainsi, en première approximation, le coefficient de frottement suit une loi puissance de type  $(U_S)^m$ , avec  $m = 0,09$  pour l'huile de base 175NS et l'huile formulée neuve et  $m = 0,12$  pour l'huile formulée vieillie. Nous interprétons cette évolution de frottement en film complet comme une résultante de la rhéologie de l'interface sous pression et cisaillement, et en particulier, à un comportement rhéofluidifiant :

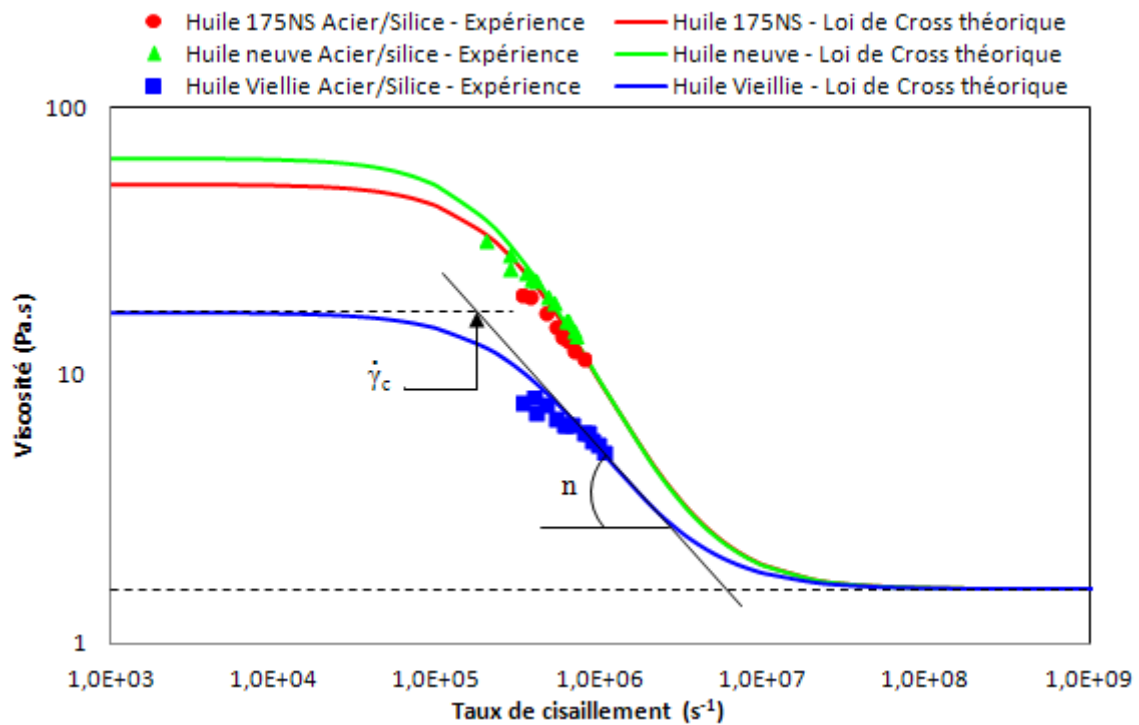
$$\mu \propto (U_S)^m \text{ i.e. } \tau \propto (U_S)^m$$

$$\text{Comme } h \propto (U_E)^{2/3} \propto (U_S)^{2/3} \text{ avec } S_{RR} \text{ constant, alors } U_S \propto (d\gamma/dt)^3$$

$$\text{On en déduit que } \tau \propto (d\gamma/dt)^{3m} \text{ et } \eta = \tau / (d\gamma/dt) \propto (d\gamma/dt)^{3m-1}$$

La Figure 58 présente l'évolution de la viscosité sous pression, issue des courbes de Stribeck, en fonction du taux de cisaillement. On observe que la viscosité sous pression du film interfacial décroît quand le taux de cisaillement augmente.





*Figure 58 : Évolution de la viscosité sous pression, issue des courbes de Stribeck, en fonction du taux de cisaillement. La viscosité sous pression du film interfacial décroît quand le taux de cisaillement augmente*

Ce comportement peut être modélisé en supposant que le milieu interfacial est, en régime de lubrification en film complet, un fluide visqueux dont la viscosité sous pression obéit à une loi de Cross (cf. équation 21). Les paramètres déduits de cette modélisation sont indiqués dans la Table 12.

Lubrifiant	Huile de base 175NS	Huile formulée neuve	Huile formulée vieillie
$\eta_0/\text{Cross sous pression [Pa.s]}$	$51,5 \pm 0,2$	$64 \pm 0,2$	$17,2 \pm 0,2$
$\eta_{\infty}/\text{Cross sous pression [Pa.s]}$	1,6	1,6	1,6
$(d\gamma/dt)_c [s^{-1}]$	$0,3 \cdot 10^6$	$0,25 \cdot 10^6$	$0,7 \cdot 10^6$
$n$	1,4	1,4	1,3

*Table 12 : Récapitulatif des données rhéologiques issues de la modélisation des courbes de Stribeck en régime de film complet en supposant que le milieu interfacial est un fluide dont l'écoulement visqueux est régi par une loi de Cross. Les paramètres correspondent à la pression à laquelle ont été réalisées les courbes de Stribeck, soit 305 MPa*

En résumé, cette analyse couplée aux résultats issus des courbes de traction et de Stribeck montre que :

- Le taux de cisaillement critique de la loi de Cross sous pression est proche de  $(d\gamma/dt)_{\text{plastique}}$  issu de la courbe de traction pour les trois huiles,

- Les valeurs de viscosité à faible taux de cisaillement,  $\eta_{0/Cross}$  sous pression, sont égales à la pente issue des rhéogrammes déterminés à partir des courbes de traction,  $\eta_{eff/P}$ . Ces viscosités correspondent à un fluide sous pression (Roelands) ayant, à pression atmosphérique et à la température moyenne des expériences de Stribeck, une viscosité égale à la viscosité effective vue par le contact en roulement pur,
- La valeur de la viscosité sous pression et à fort taux de cisaillement est un paramètre ajustable et vaut quelques Pa.s.

La difficulté essentielle de cette modélisation réside dans le fait que les courbes de Stribeck ne sont pas faites aux mêmes températures que les courbes de traction. Ceci étant, on constate que les écarts de viscosité due aux variations de température ne suffisent pas à expliquer les écarts entre les courbes de traction observés pour certains produits.

En régime de film complet, l'ensemble des réponses en frottement mesurées (traction ou Stribeck), cohérent, peut s'expliquer par l'écoulement visqueux d'un fluide sous pression dont la viscosité suit une loi de Cross.

#### 3.4.4. Frottement en régime limite et effet de surface

La totalité de la courbe de Stribeck, signature du frottement dans tous les régimes de lubrification, du régime limite au régime EHD, peut être décrite à partir du modèle modifié d'Emmens-Schipper [106]. L'évolution du frottement en fonction du nombre de Hersey, ici  $H = \eta_{eff} \cdot U_E / (P \cdot \sigma_{RMS})$ , est modélisée, en prenant en compte la transition entre les régimes limite et EHD. Dans le cadre de cette approche, le coefficient de frottement s'écrit :

$$\mu = \mu_{lim} \cdot F + \mu_{EHD} \cdot (1 - F) \quad (24)$$

avec :

$$2F = 1 - \tanh(b \cdot \log(H/H_c)),$$

$\mu_{EHD} = C \cdot H^m$  où  $m$  varie en fonction des lubrifiants comme expliqué au paragraphe précédent,  $\mu_{lim}$  le coefficient de frottement limite.

Ce modèle nous permet de décrire parfaitement l'évolution du frottement mesuré pour les contacts Acier/Silice lubrifiés (Figure 59a) et les différentes surfaces lubrifiées avec l'huile formulée vieillie (Figure 59b) et de prédire ainsi les valeurs de frottement,  $\mu_{lim}$ , en régime de

lubrification limite (valeurs reportées dans les Table 13 et Table 14) en fonction des lubrifiants et des surfaces.

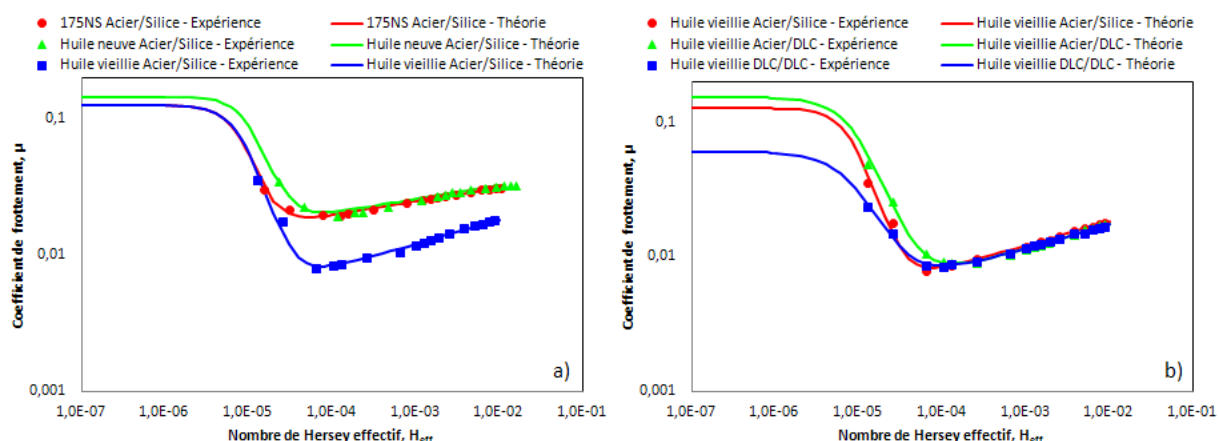


Figure 59 : Modélisation des courbes de Stribeck en fonction du nombre de Hersey ( $H = \eta_{eff} \cdot U_E / (P \cdot \sigma_{RMS})$ ) en prenant en compte la transition entre les régimes limite et EHD obtenue à partir du modèle modifié d'Emmens-Schipper, calée sur les points expérimentaux

Lubrifiant	Huile de base 175NS	Huile formulée neuve	Huile formulée vieillie
$C$	$5,1 \cdot 10^{-2}$	$5,3 \cdot 10^{-2}$	$4,1 \cdot 10^{-2}$
$m$	0,09	0,09	0,12
$H_c$	$8 \cdot 10^{-6}$	$11 \cdot 10^{-6}$	$8,8 \cdot 10^{-6}$
$b$	1,35	1,28	1,23
$\mu_{lim}$	0,12	0,15	0,13

Table 13 : Récapitulatif des paramètres caractéristiques des courbes de Stribeck pour le contact Acier/Silice et pour les trois lubrifiants

On constate que le nombre adimensionné  $H_c$ , qui décrit la transition entre les régimes limite et mixte, varie légèrement avec les lubrifiants. Le niveau de frottement,  $\mu_{lim}$ , est identique pour l'huile de base 175NS et l'huile formulée vieillie et plus élevé pour l'huile formulée neuve.

Surface	Acier/Silice	Acier/DLC	DLC/DLC
$C$	$4,1 \cdot 10^{-2}$	$3,9 \cdot 10^{-2}$	$3,9 \cdot 10^{-2}$
$m$	0,12		
$H_c$	$8,8 \cdot 10^{-6}$	$9,3 \cdot 10^{-6}$	$8,8 \cdot 10^{-6}$
$b$	1,23	0,98	0,85
$\mu_{lim}$	0,13	0,15	0,07

Table 14 : Récapitulatif des données d'entrée (EHD) et de sortie (limite) issues de la modélisation des courbes de Stribeck pour les différentes surfaces et le contact lubrifié avec l'huile formulée vieillie

L'effet de surface, présenté seulement pour l'huile vieillie, est principalement détecté sur le niveau de frottement en régime limite,  $\mu_{\text{lim}}$ , qui varie fortement en fonction du couple de surfaces considéré : le frottement limite est très faible pour le contact DLC/DLC et augmente pour atteindre 0,13 pour le contact Acier/Silice et 0,15 pour le contact Acier/DLC.

Ces effets couplés du lubrifiant et des surfaces sur le comportement tribologique du contact, observés ici en régime stationnaire, seront rediscutés plus largement dans les chapitres 4 et 5.

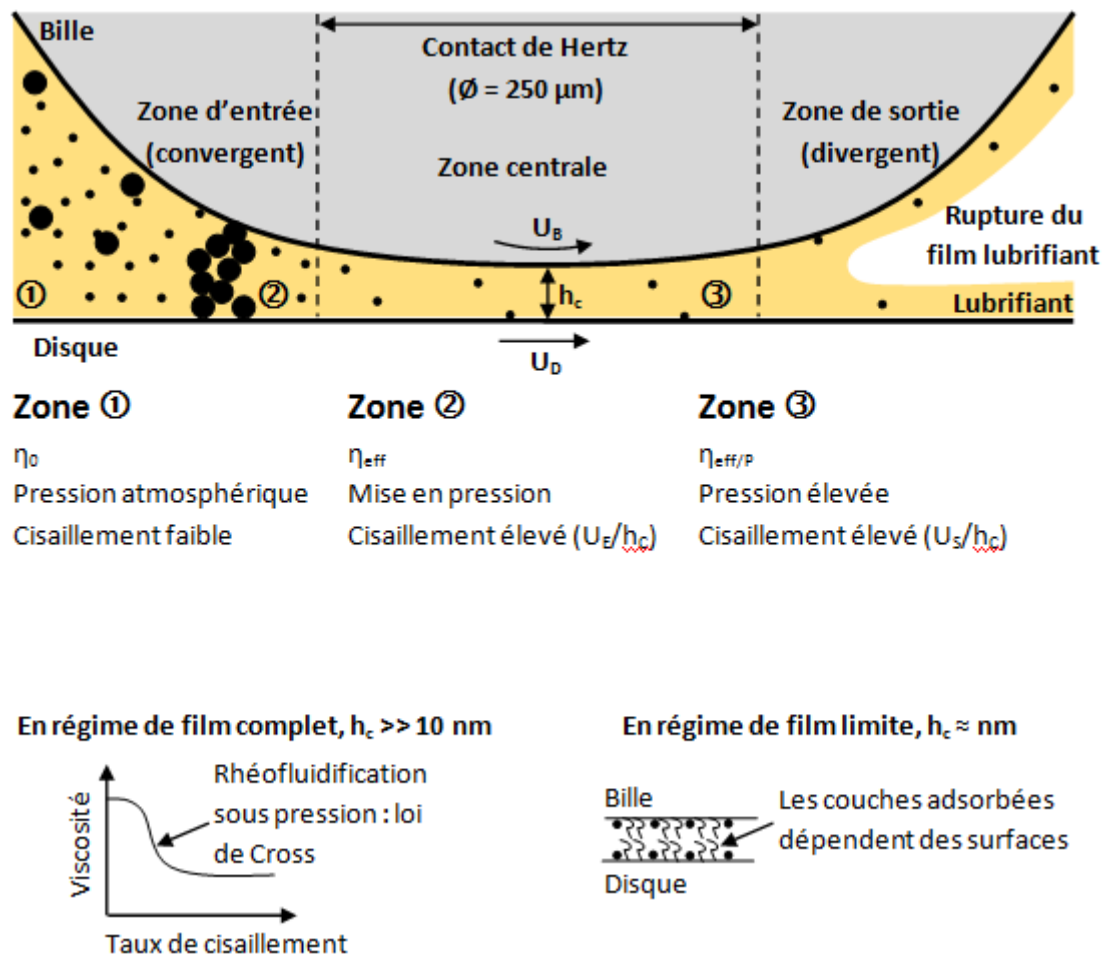
### 3.5. Conclusions

Après avoir présenté la démarche scientifique retenue ainsi que le dispositif expérimental utilisé, une description précise des lubrifiants a été faite. Le lubrifiant vieilli a fait l'objet de caractérisations physico-chimiques supplémentaires permettant de mieux décrire les particules de suie.

La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à l'étude des mécanismes de formation du film lubrifiant en l'absence de glissement relatif entre les surfaces. Ces mécanismes sont totalement indépendants de la nature des surfaces en contact sur toute la gamme de vitesse d'entraînement explorée en roulement pur. Les résultats montrent qu'il existe une viscosité effective caractéristique de l'écoulement de lubrifiant dans la zone de convergence, inférieure à la viscosité apparente  $\eta_0$  du lubrifiant, qui gouverne l'épaisseur de film lubrifiant. Une analyse rhéologique montre que l'existence de cette viscosité effective résulte plus d'un effet de filtration du convergent que d'un comportement rhéofluidifiant du lubrifiant en entrée de contact.

La dernière partie de ce chapitre est consacrée à l'analyse de la réponse tribologique de l'interface lubrifiée en conditions stationnaires notamment, au travers de courbes de traction et de courbes de Stribeck en fonction de la nature des lubrifiants et des surfaces. Les expériences de traction et de Stribeck ne mettent pas en évidence un effet des surfaces sur le frottement en film complet. Dans ce régime, l'ensemble des réponses en frottement mesurées (traction ou Stribeck) résulte de l'écoulement visqueux d'un fluide sous pression dont la viscosité suit une loi de Cross. Nous montrons que la viscosité du lubrifiant dans le contact, sous pression modérée, correspond à la viscosité effective, caractéristique de l'écoulement de lubrifiant dans la zone de convergence, mesurée d'après des expériences indépendantes en roulement pur : cela confirme l'effet de filtration du convergent. La totalité de la courbe de Stribeck est modélisée, en termes de régime de lubrification, en prenant en compte la transition entre les régimes limites et EHD. En régime limite, l'effet de surface est principalement détecté sur le niveau de frottement,  $\mu_{\text{lim}}$ , qui varie fortement en fonction du couple de surfaces considéré : le couple DLC/DLC génère les contraintes de cisaillement les plus faibles.

La Figure 60 synthétise les mécanismes de lubrification se produisant en régime stationnaire.



*Figure 60 : Schéma récapitulatif des mécanismes de lubrification se produisant en régime stationnaire*

Dans ces conditions cinématiques, le rôle des suies sur les niveaux de frottement et les interactions avec les surfaces carbonées n'est pas éclairci. Afin de mettre en évidence des interactions surfaces suies, il apparaît comme nécessaire de tester les lubrifiants et les surfaces dans des conditions transitoires et une configuration cinématique assez particulière : le glissement pur. Dans ces conditions, il n'y a plus aucune vitesse d'entraînement dans le contact et par conséquent, un volume de fluide est piégé ce qui permet d'étudier les interactions entre suies et surfaces. C'est l'objet du chapitre suivant.

# Chapitre 4

## Comportement tribologique du film interfacial en glissement pur

### Sommaire

4.1.	<i>Introduction</i> .....	102
4.2.	<i>Approche scientifique et cinématique du contact</i> .....	102
4.3.	<i>Description du phénomène d'agrégation sous glissement pur</i> .....	103
4.3.1.	Observations <i>in situ</i> et processus d'agrégation .....	103
4.3.2.	Distribution des épaisseurs au sein du contact .....	105
4.3.3.	Cinématique des agrégats.....	107
4.3.4.	Affinité de l'agrégat aux surfaces.....	108
4.4.	<i>Loi de frottement en glissement pur</i> .....	109
4.5.	<i>Influence de la vitesse en glissement pur</i> .....	112
4.5.1.	Cinétique d'agrégation .....	112
4.5.2.	Comportement des agrégats soumis à la force centrifuge .....	113
4.5.3.	Vitesse moyenne des agrégats et temps de résidence .....	114
4.5.4.	Loi de frottement .....	116
4.6.	<i>Conclusions</i> .....	116

#### 4.1. Introduction

L'analyse du comportement tribologique du film interfacial en régime stationnaire, qui a fait l'objet du chapitre précédent, n'a pas permis de mettre en évidence un effet direct des particules solides de suie. Dans ce chapitre, le comportement tribologique du film interfacial est étudié dans un régime stationnaire au travers d'une cinématique bien particulière qui permet, entre autres, l'étude du rôle des divers constituants du lubrifiant et en particulier le rôle des particules solides de suie.

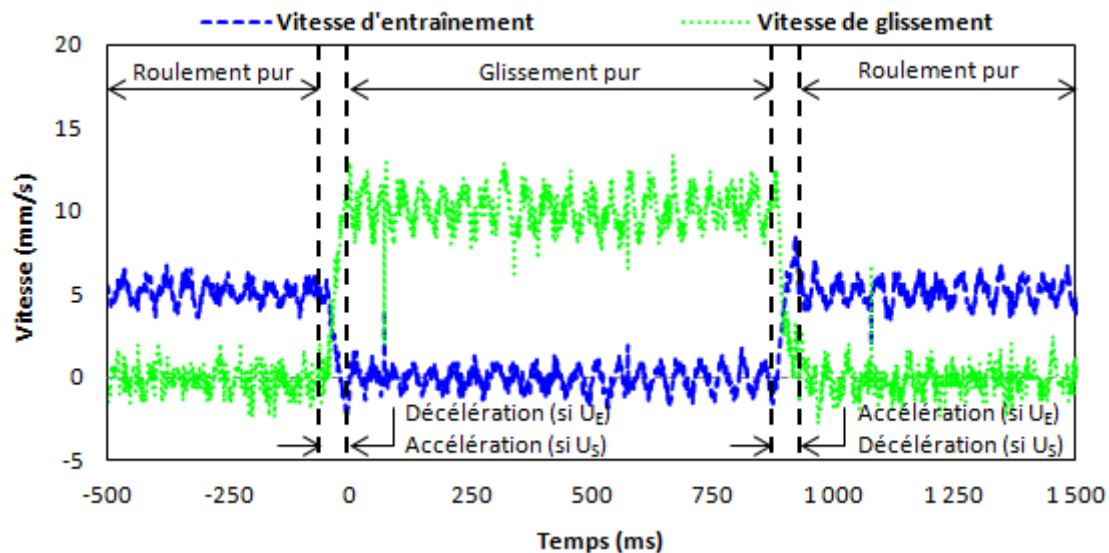
Aux petites échelles de temps se situent les phénomènes transitoires, temporels rapides qui apparaissent lorsqu'un système dynamique répond à un changement d'excitation, que les techniques d'imagerie rapide permettent aujourd'hui de filmer au centième de milliseconde. Ainsi, après une description précise de la cinématique du contact, nous étudierons les conditions de glissement pur (vitesse d'entraînement nulle) lors desquelles un phénomène rapide d'agrégation des suies se produit au sein du contact lubrifié. Nous analyserons ensuite la réponse en frottement due au phénomène d'agrégation des suies dans le contact. Les conditions tribologiques seront modifiées afin d'étudier le rôle de la vitesse de glissement et son influence sur les phénomènes d'agrégation observés.

#### 4.2. Approche scientifique et cinématique du contact

Au sein du contact Segments/Chemise se produisent de nombreux phénomènes transitoires qui sont essentiellement dus à la cinématique particulière qui régit ce contact. Cette cinématique n'est pas linéaire mais sinusoïdale et comporte donc des mouvements alternatifs avec des fréquences d'oscillation de plusieurs dizaines de Hertz associée à une faible amplitude de la course du piston, de l'ordre d'une centaine de millimètres. Ces mouvements alternatifs produisent des annulations de la vitesse d'entraînement aux points de rebroussement. Cela a pour conséquence d'introduire des vitesses de glissement de plusieurs mètres par seconde qui génèrent des instabilités vibratoires et des phases d'accélération/décélération brutales qui déstabilisent le film lubrifiant confiné entre les deux surfaces.

L'objectif scientifique de ce chapitre vise à améliorer notre compréhension des phénomènes de lubrification transitoires en régime limite/mixte et d'étudier le comportement du lubrifiant à l'échelle du contact sous diverses sollicitations dépendants du temps, en particulier aux faibles vitesses d'entraînement et en présence de glissement pur.

Pour étudier les phénomènes transitoires mis en jeu dans la zone SPC, une campagne d'essais a été menée sur le tribomètre IRIS afin de reproduire différentes conditions transitoires dans un contact modèle. Ils permettent de se rapprocher des conditions cinématiques du contact Segments/Chemise et d'exposer les phénomènes physiques associés. Dans ce chapitre, le comportement tribologique du contact est étudié pour un couple unique de surfaces (Bille Acier/Disque Silice), un lubrifiant unique (huile formulée vieillie) et pour un cycle de vitesse trapézoïdale (Figure 61) constitué de périodes successives de roulement pur ( $U_D = U_B$  soit  $U_S=0$ ) et de glissement pur ( $U_D = - U_B$  c'est à dire  $U_E = 0$ ). Lors des phases de glissement pur, en raison de la cinématique de contact, le débit de lubrifiant s'annule et le lubrifiant reste alors piégé dans le contact.



*Figure 61 : Cinématique trapézoïdale montrant l'évolution de la vitesse d'entraînement et de la vitesse de glissement en fonction du temps. Le comportement tribologique du contact est étudié pour un cycle de vitesse composé de périodes successives de roulement pur et de glissement pur. Au cours du glissement pur, pour  $t = 0$  ms, la vitesse d'entraînement est égale à zéro ce qui correspond à l'annulation du débit de lubrifiant*

Cette cinématique trapézoïdale met en évidence deux régimes bien distincts :

- Un régime stationnaire, identifié par des phases de glissement pur. Dans ce régime, les fluctuations périodiques de la vitesse des solides entraînent une sollicitation vibratoire à haute fréquence qui participe à la déstabilisation rapide du lubrifiant,
- Un régime transitoire, identifié par des phases de changement de sens du disque. Dans ce régime, des périodes d'accélération/décélération sollicitent le tribosystème et induisent des réponses temporelles rapides, de l'ordre de quelques millisecondes.

Ces deux régimes sont analysés séparément dans la suite de ce manuscrit. L'effet de surface est également présenté au chapitre suivant.

### 4.3. Description du phénomène d'agrégation sous glissement pur

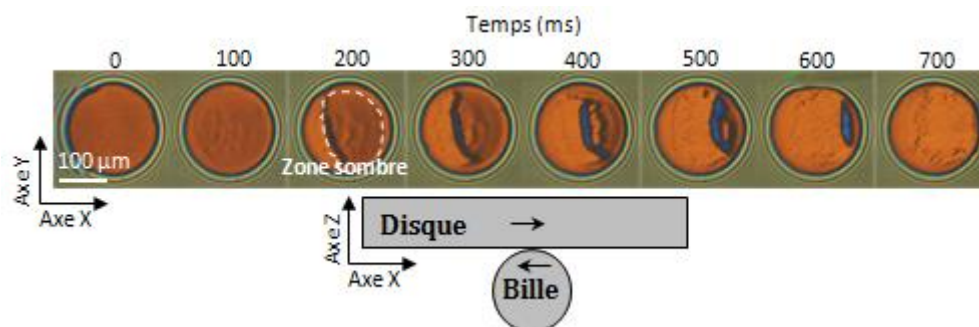
#### 4.3.1. Observations *in situ* et processus d'agrégation

Dans cette partie, nous allons décrire en détail le régime stationnaire associé aux phases de glissement pur ainsi que les résultats obtenus pour le couple Bille Acier/Disque Silice et le lubrifiant vieilli. L'introduction de cisaillement, et en particulier des conditions de glissement pur, conduit à un phénomène d'agrégation qui se reproduit de façon similaire à chaque cycle. La visualisation *in situ* de la dynamique du contact est réalisée par imagerie rapide et l'évolution de la force de frottement est reliée aux phénomènes transitoires observés au sein du contact.

La Figure 62 illustre le processus d'agrégation qui se produit pendant la phase de glissement pur ( $U_E = 0$ ) en fonction du temps, pour une vitesse de glissement de 10 mm/s. Au début du



glissement pur (à  $t = 0$  ms), l'interférogramme de contact obtenu est homogène et la couleur réfléchie dans la zone de haute pression est alors orange foncé. Au cours du temps, une petite zone sombre en forme de croissant apparaît sur le côté gauche du contact lubrifié (pour  $t \approx 200$  ms), et sépare le contact en deux zones colorées : une zone orange clair à l'extrême gauche du contact, et une zone orange foncé à l'extrême droite du contact. Cette frontière sombre se déplace de la gauche vers la droite suivant l'axe X. L'axe X positif correspond au sens de rotation du disque tandis que l'axe X négatif correspond au sens de rotation de la bille.



*Figure 62 : Série d'interférogrammes montrant le processus d'agrégation en fonction du temps au cours d'une phase de glissement pur pour le lubrifiant vieilli. Le diamètre du contact Acier/Silice est de  $250\text{ }\mu\text{m}$ . La bille va de la droite vers la gauche tandis que le disque va de la gauche vers la droite. Un agrégat se forme et se déplace suivant la direction du mouvement du disque le long de l'axe X avant de finir par sortir du contact*

La surface occupée par cette zone plus sombre diminue au cours de sa progression dans le contact lubrifié. Cette zone est considérée comme un bloc homogène dont la couleur change et devient bleu clair au cours du cisaillement. On peut s'interroger sur la nature de cette zone sombre et la réponse n'est pas simple. En effet, l'indice de réfraction  $\tilde{n}$  d'un milieu est un nombre sans dimension qui décrit la façon dont la lumière, ou tout autre rayonnement, se propage à travers ce milieu [107]. Dans un média opaque, l'indice de réfraction est un nombre complexe dont la partie réelle décrit la réfraction et la partie imaginaire l'absorption. Il est défini comme :

$$\tilde{n} = n - iK \quad (25)$$

avec :

$\tilde{n}$  est l'indice de réfraction,

$n$  est la partie réelle de l'indice de réfraction,

$K$  est la partie imaginaire de l'indice de réfraction.

Pour les suies issues de la combustion incomplète du carburant,  $n$  varie de 1,5 à 2 et  $k$  varie de 0,35 à 0,8 [108]. Nous pouvons alors faire les deux hypothèses suivantes :

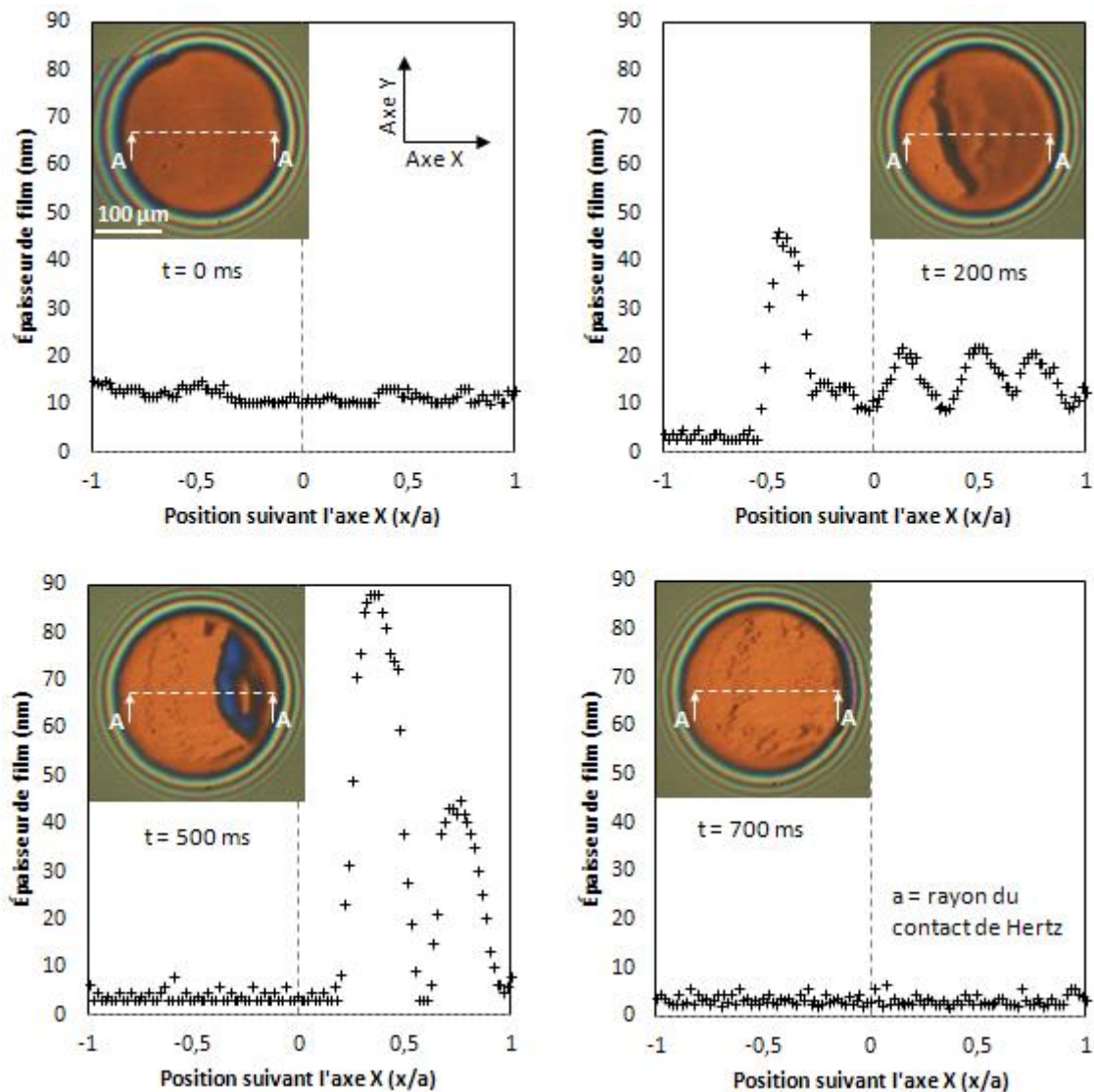
- Soit  $\tilde{n}$  est constant et tout changement de couleur dans les interférogrammes de contact est directement lié à une variation de l'épaisseur du film,
- Soit  $\tilde{n}$  est variable et tout changement de couleur dans les interférogrammes de contact est directement associé à une variation de la concentration locale des molécules ou des particules dans le lubrifiant qui modifie également sa viscosité et donc potentiellement son épaisseur.

Le changement de couleur de la zone en forme de croissant au cours du glissement pur peut alors être attribuée, soit à l'augmentation de l'épaisseur du film de lubrifiant, soit à une variation locale de la teneur en suie associée à une augmentation de l'épaisseur du film de lubrifiant, soit aux deux. On supposera que la zone sombre est un agrégat d'épaisseur variable dans le temps, qui peut être constitué de particules solides de suie ou de tout autre composant moléculaire du lubrifiant (additifs, pelotes de polymère, molécules d'huile de base, etc).

Au cours du déplacement de l'agrégat au sein du contact, la surface de la zone de couleur orange clair semble augmenter à l'arrière de l'agrégat. La couleur de cette zone (orange clair) est différente de la couleur observée au début de glissement pur (orange foncé). Juste avant de sortir du contact (à  $t \approx 633$  ms), l'agrégat s'est déplacé sur une distance de  $250\text{ }\mu\text{m}$ , soit 100 % du diamètre du contact de Hertz, et son temps de résidence dans le contact est d'environ 600ms. Il se déplace donc à une vitesse moyenne de  $400\text{ }\mu\text{m/s}$ . Une fois l'agrégat sorti de la zone de contact (à  $t = 700$  ms), la couleur des interférogrammes reste orange clair partout dans la zone de haute pression et il n'y a pas de nouvel agrégat formé.

#### **4.3.2. Distribution des épaisseurs au sein du contact**

Le tribomètre IRIS permet de visualiser la distribution spatiale de l'épaisseur du film lubrifiant, mais également d'analyser le processus d'agrégation des suies ainsi que leur cinématique grâce à une multitude de conditions tribologiques. Dans des conditions de glissement pur, la distribution d'épaisseur du film lubrifiant est modifiée par un phénomène d'agrégation des suies se produisant au sein du contact. La Figure 63 illustre cette distribution des épaisseurs au sein du contact, mesurée en supposant que le processus d'agrégation ne modifie pas l'indice de réfraction du milieu interfacial.



**Figure 63 : Profils d'épaisseurs de lubrifiant vieilli suivant le plan de coupe A-A pour le couple Bille Acier/Disque Silice et pour une vitesse de glissement pur de 10 mm/s. La formation et la propagation de l'agrégat modifie la distribution des épaisseurs au sein du contact dont le diamètre est de 250  $\mu\text{m}$ . Au début du glissement pur, lorsqu'un agrégat est présent, l'épaisseur moyenne du film vaut environ 12-14 nm. À la fin du glissement pur, lorsqu'il n'y a plus d'agrégat, elle vaut environ 3-4 nm**

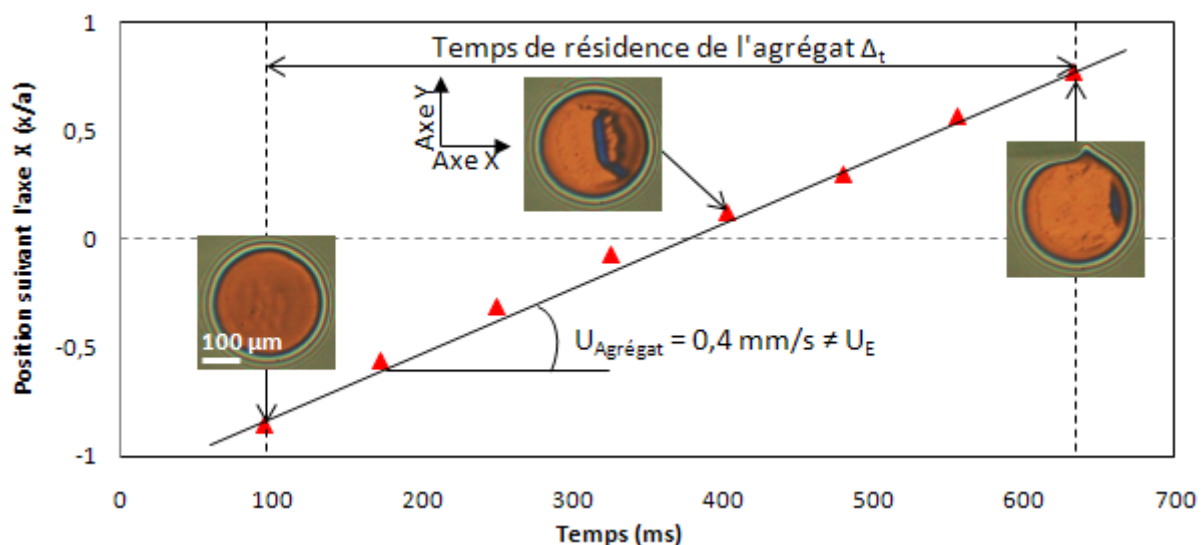
Dans cette configuration de glissement pur, le volume de lubrifiant initial est piégé car le débit d'alimentation du contact est nul. À  $t = 0$  ms, la zone contenant les agrégats occupe l'ensemble du contact et l'épaisseur du film d'huile est relativement constante et comprise entre 12 et 14 nm. À  $t = 200$  ms, cette zone n'occupe plus la totalité du contact et sa couleur devient localement plus foncée : son épaisseur n'est plus constante. Ainsi, hors agrégat (à l'extrême gauche du contact), la couleur est orange clair et l'épaisseur est comprise entre 3 et 4 nm ce qui peut correspondre soit à une zone lubrifiée avec de l'huile de base ou à une zone couverte par des couches d'additifs de taille moléculaire. Dans la zone constituée par l'agrégat, on trouve des épaisseurs de l'ordre de 45 nm dans la partie de couleur noire mais aussi de l'ordre de 15 nm à l'extrême droite de l'agrégat (dans la partie orange foncé). Au cours du glissement pur, à  $t = 500$  ms, l'épaisseur d'une partie de l'agrégat, de couleur bleu clair, a augmenté et vaut environ 90 nm. À l'extrême droite de l'agrégat on retrouve une couleur noir d'épaisseur 45 nm.

L'épaisseur hors agrégat, de couleur orange clair, reste constante et en moyenne comprise entre 3 et 4 nm. Enfin, lorsque l'agrégat a quitté le contact, pour  $t = 700$  ms, la couleur orange clair est partout présente dans la zone de haute pression. L'épaisseur est donc homogène partout dans le contact, de l'ordre de 3 à 4 nm, plus faible que l'épaisseur initiale au début de la période de glissement pur.

En conclusion, au démarrage de la période de glissement pur, la zone contenant les agrégats occupe tout le contact et son épaisseur, homogène, vaut environ 12-14 nm. Puis la croissance de l'agrégat modifie la distribution des épaisseurs au sein du contact. Une fois l'agrégat sorti, on retrouve une épaisseur homogène d'environ 3-4 nm.

#### 4.3.3. Cinématique des agrégats

Le mouvement de l'agrégat peut être décrit avec précision en analysant les interférogrammes de contact acquis à l'aide de la caméra rapide. La trajectoire de plusieurs points de l'agrégat est suivie au cours du temps : tous ces points suivent la même trajectoire. En conséquence, et pour éviter de surcharger les figures, on ne s'intéresse qu'à la position du centre de gravité de l'agrégat dans la suite du chapitre. À partir de cette évolution au sein de la zone de contact, il est possible de déterminer la vitesse instantanée de l'agrégat lors d'une phase de glissement pur. Comme l'agrégat se déplace principalement le long de l'axe X et très légèrement le long de l'axe Y dans les conditions testées, on ne calcule que la vitesse de l'agrégat le long de l'axe X. La Figure 64 montre l'évolution de la position du centre de gravité de l'agrégat le long de l'axe X en fonction du temps.



**Figure 64 :** Position du centre de gravité de l'agrégat le long de l'axe X en fonction du temps au cours d'une phase de glissement pur. La trajectoire de l'agrégat est essentiellement linéaire le long de l'axe X. La vitesse instantanée de l'agrégat n'est pas égale à zéro durant la phase de glissement pur. Le diamètre du contact Bille Acier/Disque Silice est de 250 µm

La position de l'agrégat le long de l'axe X est une fonction linéaire du temps conduisant à une vitesse instantanée égale à 0,4 mm/s, beaucoup plus faible que la vitesse de glissement pur ( $U_S=10$  mm/s). La vitesse instantanée de l'agrégat est égale à la vitesse moyenne de déplacement

de l'agrégat au sein du contact. Au cours du glissement pur, la vitesse d'entraînement est théoriquement égale à zéro. Cependant, les signaux de la vitesse d'entraînement et de la vitesse de glissement fluctuent avec une fréquence d'environ 23 Hz. Ces fluctuations sont dues à l'asservissement des deux moteurs synchrones brushless du tribomètre IRIS. Ces vibrations d'interface peuvent provoquer des instabilités du glissement stationnaire et conduire à des ondes d'adhérence/glissement. La fluctuation des signaux mesurés conduit à une vitesse résiduelle d'entraînement moyenne égale à -0,1 mm/s le long de l'axe X qui s'oppose au déplacement de l'agrégat (0,4 mm/s). L'effet d'entraînement induit par ces fluctuations de vitesse n'explique pas le déplacement de l'agrégat dans le contact. Par ailleurs, l'agrégat suit la direction du mouvement du disque. Nous pouvons donc supposer que l'interaction de l'agrégat avec les surfaces pilote son adhérence vis-à-vis du disque et de la bille, et contribue à sa cinématique au sein du contact.

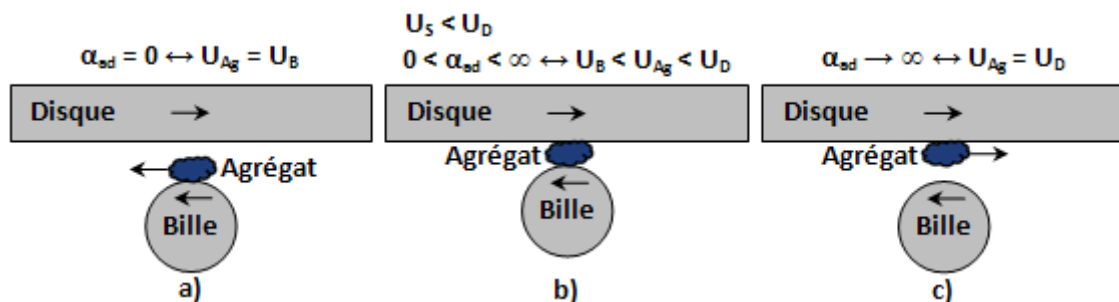
#### 4.3.4. Affinité de l'agrégat aux surfaces

La partie précédente montre que l'agrégat se déplace dans le contact lubrifié alors qu'il n'y a théoriquement pas de vitesse d'entraînement lors des phases de glissement pur. À partir de ces observations, nous pouvons discuter du mouvement de l'agrégat en termes d'adhésion préférentielle de l'agrégat à l'une des deux surfaces. L'adhérence relative de l'agrégat aux surfaces peut être caractérisée par le nombre sans dimension  $\alpha_{ad}$  qui se définit comme étant le rapport de la vitesse relative de l'agrégat par rapport à la bille sur la vitesse relative de l'agrégat par rapport au disque [24].

$$\alpha_{ad} = \frac{U_B - U_{Ag}}{U_{Ag} - U_D} \quad (26)$$

avec  $\alpha_{ad}$  le paramètre caractéristique de l'adhérence agrégat/surface [-], et  $U_{Ag}$  la vitesse de l'agrégat [m/s].

La vitesse de l'agrégat étant toujours comprise entre celle du disque et celle de la bille,  $\alpha_{ad}$  est donc toujours positif ou nul. L'affinité que présente l'agrégat vis-à-vis des surfaces peut être évaluée à partir de la valeur de  $\alpha_{ad}$  illustrée schématiquement par l'une des trois configurations de la Figure 65.



*Figure 65 : Cinématique d'un agrégat se déplaçant dans un contact lubrifié selon qu'il adhère à la bille (a), qu'il présente une adhérence partagée avec la bille et le disque (b) ou qu'il adhère au disque (c)*

Pour  $\alpha_{ad} = 0$ , la vitesse de l'agrégat est égale à celle de la bille. Dans ce cas, l'agrégat est supposé coller à la surface de la bille et donc glisser sur la surface du disque. Pour  $0 < \alpha_{ad} < 1$ ,  $U_B - U_{Ag} < U_{Ag} - U_D$ , l'agrégat présente plus d'adhérence avec la bille qu'avec le disque et pour  $1 < \alpha_{ad} < \infty$ ,  $U_B - U_{Ag} > U_{Ag} - U_D$ , l'agrégat présente plus d'adhérence avec le disque qu'avec la bille. Si  $\alpha_{ad} = 1$ ,  $U_{Ag} = U_E$  et l'agrégat est entraîné par le lubrifiant. L'agrégat a la même « affinité » pour la bille et le disque et glisse sur les deux surfaces. Lorsque  $\alpha_{ad} \rightarrow \infty$ , la vitesse de l'agrégat est égale à celle du disque. L'agrégat est supposé coller à la surface du disque et donc glisser sur la surface de la bille. Dans le cadre de nos expériences, au cours de la période de glissement pur avec le couple de surface Bille Acier/Disque Silice,  $\alpha_{ad} = 1,17$ , ce qui signifie que l'agrégat glisse sur les deux surfaces mais présente plus d'affinité avec la surface en silice. Ceci est bien corrélé avec nos observations qui montrent que l'agrégat se déplace dans la même direction que le disque.

Les expériences ont été reproduites à l'identique plusieurs fois et elles ont conduit à des observations et des résultats analogues. Par ailleurs, la cinématique trapézoïdale a ensuite été réalisée en inversant seulement le sens de rotation de la bille. Le processus d'agrégation est totalement similaire mais le sens de déplacement de l'agrégat est également inversé. Ainsi, l'agrégat se déplace de la droite vers la gauche (suivant l'axe -X) suit toujours la surface en silice, donc le disque.

En conclusion, le phénomène d'agrégation sous glissement pur est répétable. Ce sont les interactions agrégat/surface qui régissent le déplacement de l'agrégat dans le contact lubrifié.

#### **4.4. Loi de frottement en glissement pur**

Afin d'analyser la corrélation entre ce processus d'agrégation et la réponse en frottement, nous avons étudié l'évolution de la contrainte de cisaillement au cours de la phase de glissement pur ( $U_S = 10$  mm/s et  $U_E = 0$  mm/s) pour le contact Bille Acier/Disque Silice (Figure 66).

De 0 à 100 ms, la contrainte de cisaillement est constante et est égale à 12 MPa. De 100 à 700ms, la contrainte de cisaillement augmente linéairement. De 700 à 900 ms, la contrainte de cisaillement est de nouveau constante et est égale à 38 MPa. Lorsque la contrainte de cisaillement est stabilisée à son niveau le plus bas, entre 0 et 100 ms, un film homogène d'épaisseur 12 nm lubrifie le contact. Lorsque la contrainte de cisaillement varie avec le temps, entre 100 et 700 ms, le contact est hétérogène et présente des variations locales d'épaisseur. Enfin, lorsque la contrainte de cisaillement est stabilisée à son niveau le plus haut, entre 700 et 900 ms, un film homogène d'épaisseur 3 nm lubrifie le contact.



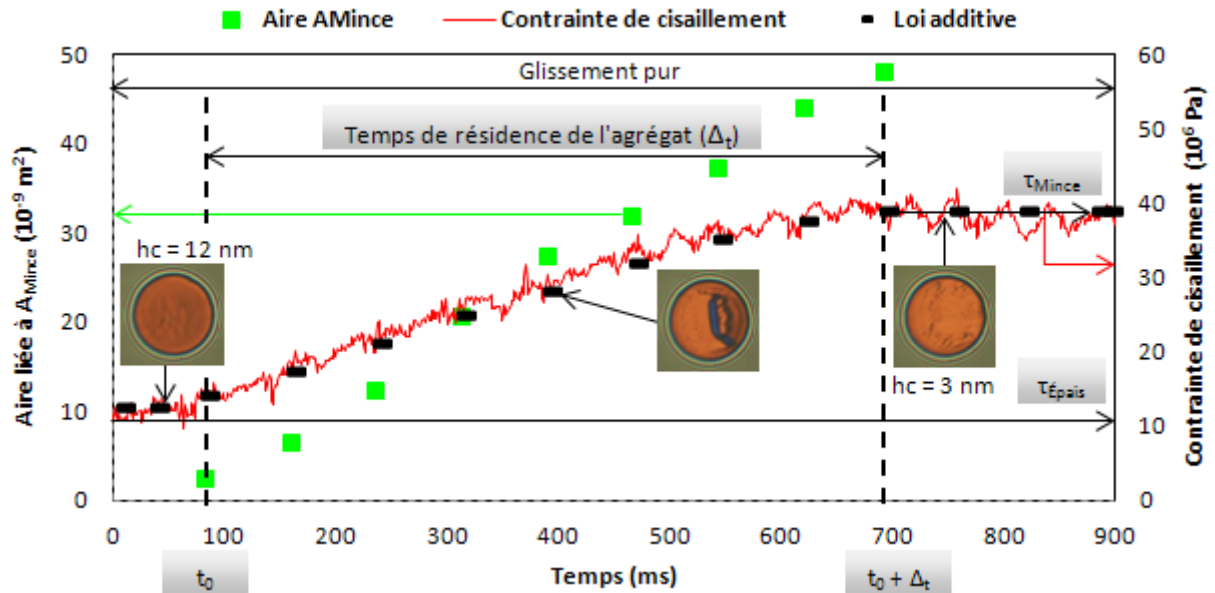


Figure 66 : Évolution de la zone lubrifiée par un film mince (zone orange clair),  $A_{\text{Mince}}$ , et de la contrainte de cisaillement au cours du temps lors d'une phase de glissement pur. Lorsque  $A_{\text{Mince}}$  est nulle, la contrainte de cisaillement est faible, de l'ordre de 12 MPa. Quand un agrégat est visible dans le contact lubrifié, la contrainte de cisaillement augmente de manière linéaire avec le temps comme l'aire de la zone lubrifiée par un film mince. Lorsque  $A_{\text{Mince}} = 49.10^9 \text{ m}^2$  (soit la totalité du contact Hertzien), la contrainte de cisaillement atteint 38 MPa et reste constante durant toute la période de glissement pur. La loi additive, tracée en pointillés, est en bon accord avec l'évolution expérimentale de la contrainte de cisaillement. Le frottement résulte d'une contribution multiphasique en raison de la présence des deux régions  $A_{\text{Mince}}$  et  $A_{\text{Épais}}$  dans lesquelles le cisaillement diffère

Sur la base des observations précédentes, lorsque le cisaillement se produit, un interférogramme de contact peut alors être divisé en deux régions d'intérêt clairement distinctes l'une de l'autre. La Figure 67 montre ces deux régions d'intérêt.

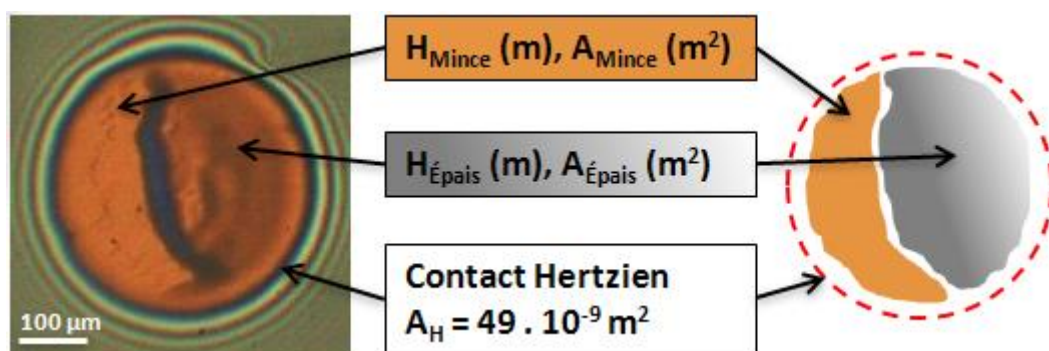


Figure 67 : Interférogramme de contact divisé en deux régions d'intérêt. La première région d'intérêt,  $A_{\text{Mince}}$ , est une zone lubrifiée par un mince film d'huile de 3 à 4 nm. La deuxième région d'intérêt,  $A_{\text{Épais}}$ , est une zone lubrifiée par un film d'huile dont l'épaisseur est comprise entre 12 et 90 nm. Des agrégats de différentes tailles peuvent se former dans cette deuxième région

La première région d'intérêt, notée  $A_{\text{Mince}}$ , est une zone sans agrégats visibles, lubrifiée avec un mince film d'huile ayant une épaisseur d'environ 3 à 4 nm. La deuxième région d'intérêt, notée  $A_{\text{Épais}}$ , est une zone contenant des agrégats, lubrifiée avec un film d'huile ayant une épaisseur comprise entre 12 et 90 nm. Le taux de couverture de la zone avec un mince film d'huile, noté alors  $S_{\text{Mince}}$ , est défini comme le rapport entre l'aire de la zone  $A_{\text{Mince}}$  et l'aire de contact de Hertz, notée  $A_H$  et  $S_{\text{Mince}} + S_{\text{Épais}} = 1$ .

La Figure 66 montre la corrélation entre la surface lubrifiée par un film mince,  $A_{\text{Mince}}$ , et la contrainte de cisaillement correspondante en fonction du temps. Ceci est rendu possible grâce à la synchronisation des signaux de force avec la visualisation *in situ*. Lors des premières 100 ms, la contrainte de cisaillement minimale, dénommée  $\tau_{\text{Épais}}$ , est de 12 MPa et correspond au contact initial lubrifié par un film homogène de 12 nm d'épaisseur ( $S_{\text{Épais}} = 100\%$  et  $S_{\text{Mince}} = 0\%$ ). De 100 à 700 ms, lorsque la contrainte de cisaillement augmente linéairement, la zone occupée par les agrégats,  $S_{\text{Épais}}$ , diminue et par conséquent,  $S_{\text{Mince}}$  augmente. De 700 à 900 ms, la contrainte de cisaillement maximale, dénommée  $\tau_{\text{Mince}}$ , est constante, égale à 38 MPa et correspond au contact final lubrifié par un film mince homogène de 3 à 4 nm d'épaisseur ( $S_{\text{Mince}} = 100\%$ ) lorsque les agrégats ne sont plus visibles ou qu'ils sont sortis du contact.

D'après la Figure 66, l'évolution de la contrainte de cisaillement semble être liée à celle de la fraction de la surface de contact occupée par l'agrégat,  $S_{\text{Épais}}$ , et la zone du contact lubrifiée par un film mince,  $S_{\text{Mince}}$ . À partir de cette hypothèse, nous proposons une loi additive de frottement en considérant un contact multiphasique composé d'une part d'un milieu interfacial « épais » contenant des agrégats (particules de suie, polymères, additifs, insolubles, etc) et d'autre part d'un film mince d'huile [109]. Chacune des phases ainsi identifiées contribue au cisaillement de façon indépendante. Par conséquent, la force de frottement peut s'écrire de la façon suivante :

$$Ft = Ft_{\text{Mince}} + Ft_{\text{Épais}} \quad (27)$$

$$\tau * A_H = \tau_{\text{Mince}} * A_{\text{Mince}} + \tau_{\text{Épais}} * A_{\text{Épais}} \quad (28)$$

Comme  $A_H = A_{\text{Mince}} + A_{\text{Épais}}$ , la contrainte de cisaillement,  $\tau$ , peut être calculée :

$$\tau = \frac{\tau_{\text{Mince}} * A_{\text{Mince}}}{A_H} + \frac{\tau_{\text{Épais}} * (A_H - A_{\text{Mince}})}{A_H} \quad (29)$$

$$\tau = \tau_{\text{Mince}} * S_{\text{Mince}} + \tau_{\text{Épais}} * (1 - S_{\text{Mince}}) \quad (30)$$

avec :

$\tau$  est la contrainte de cisaillement [Pa],

$\tau_{\text{Mince}}$  est la contrainte de cisaillement due à la zone du contact lubrifiée par une mince couche de film [Pa],



$\tau_{\text{Épais}}$  est la contrainte de cisaillement due à la zone du contact lubrifiée par un milieu interfacial contenant les agrégats [Pa],

$A_{\text{Mince}}$  est l'aire de la zone de contact lubrifiée par un film mince d'huile [m<sup>2</sup>],

$A_{\text{Épais}}$  est l'aire de la zone de contact lubrifiée par un milieu interfacial contenant les agrégats [m<sup>2</sup>],

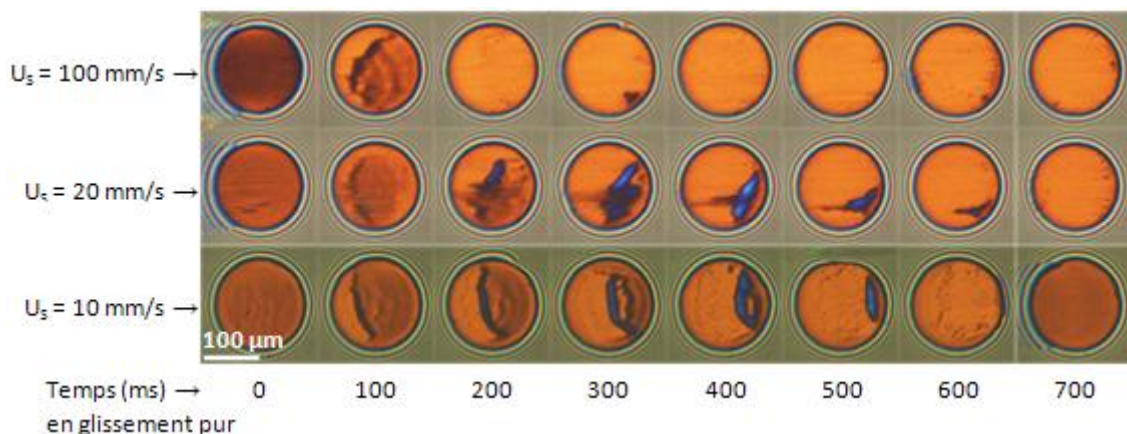
$A_H$  est l'aire du contact de Hertz [m<sup>2</sup>].

L'évolution de la contrainte de cisaillement calculée à partir de l'équation (29) est tracée en pointillés sur la Figure 66 : nous pouvons voir que le modèle est en bon accord avec les valeurs expérimentales. Par conséquent, l'hypothèse d'une loi additive semble valide et le frottement proviendrait de la contribution de plusieurs phases réparties dans deux zones au sein du contact: la zone lubrifiée par un mince film et la fraction de la surface du contact occupée par les agrégats. La signification physique de  $\tau_{\text{Mince}}$  et  $\tau_{\text{Épais}}$  sera discutée et éclaircie dans la suite de ce chapitre et dans le chapitre 5.

## 4.5. Influence de la vitesse en glissement pur

### 4.5.1. Cinétique d'agrégation

Cette partie du chapitre vise à analyser les effets d'un changement de la vitesse de glissement sur le processus d'agrégation tout en gardant les autres paramètres constants (nature des surfaces et des lubrifiants, pression de contact et de la température). Plusieurs cinématiques trapézoïdales similaires à celles présentées à la Figure 61 ont été étudiées pour des vitesses de glissement pur de 3,2 ; 10 ; 20 et 100 mm/s. La Figure 68 montre les mécanismes d'agrégation, pour un même lubrifiant vieilli, en fonction de la vitesse de glissement.



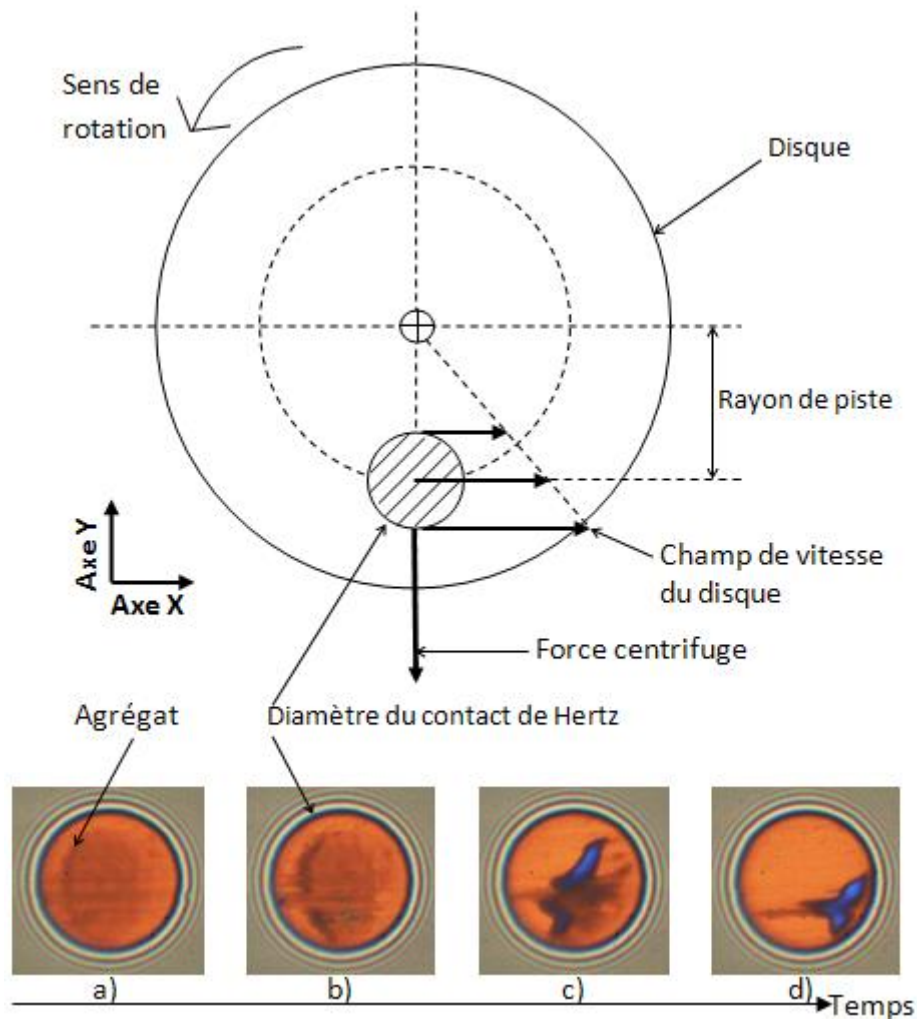
*Figure 68 : Mécanismes d'agrégation au cours d'une phase de glissement pur en fonction de la vitesse de glissement pour un même lubrifiant vieilli. Le diamètre du contact Bille Acier/Disque Silice est de 250  $\mu\text{m}$ . La bille se déplace de la droite vers la gauche alors que le disque se déplace de la gauche vers la droite. Quelle que soit la vitesse de glissement, un agrégat se forme et se déplace suivant la direction du mouvement du disque avant de sortir du contact. Plus la vitesse de glissement augmente, plus le temps de résidence de l'agrégat diminue*

Quelle que soit la vitesse de glissement, les mécanismes d'agrégation restent similaires. Cependant, plus la vitesse de glissement augmente et plus le temps de résidence de l'agrégat diminue. Autrement dit, plus la vitesse de glissement est grande et plus rapidement l'agrégat est expulsé du contact. Dans la gamme étudiée des vitesses de glissement, l'adhérence relative des agrégats aux surfaces est similaire : les agrégats suivent la surface du disque lors des phases de glissement pur puisque l'agrégat formé se déplace positivement suivant l'axe X (de la gauche vers la droite sur les interférogrammes). Ces résultats ont également été confirmés par des expériences réalisées en inversant le sens de glissement. Néanmoins, plus la vitesse de glissement augmente et plus le déplacement de l'agrégat selon l'axe Y (du haut vers le bas sur les interférogrammes) est important. Ceci suggère un effet de la force centrifuge, expliqué plus en détail dans la partie suivante.

#### **4.5.2. Comportement des agrégats soumis à la force centrifuge**

L'augmentation de la vitesse de glissement conduit à une augmentation de la vitesse angulaire du disque et de la bille ce qui modifie le mouvement des agrégats. En effet, le champ de vitesse imposé par le disque (au point de contact entre la bille et le disque) n'est pas homogène tandis que celui imposé par la bille est linéaire. Ainsi, plus la vitesse angulaire du disque augmente, et plus les agrégats subissent les effets de la force centrifuge. La Figure 69 décrit le mouvement des agrégats lorsque ceux-ci sont affectés par la présence d'une force centrifuge pour le couple Bille Acier/Disque Silice pour des vitesses de glissement supérieures à 20 mm/s.

Au début de la phase de glissement pur, l'agrégat est formé à proximité de la zone de constriction située du côté gauche du contact lubrifié (Figure 69a). L'agrégat, alors piégé, subit des contraintes mécaniques qui dépendent du champ de vitesse imposé par la cinématique de contact : d'une part, l'agrégat se déplace positivement le long de l'axe X (de la gauche vers la droite sur les interférogrammes) et s'oriente en raison du champ de vitesse angulaire du disque (Figure 69b) ; d'autre part, l'agrégat se déplace négativement le long de l'axe Y (du haut vers le bas sur les interférogrammes) à cause de la force centrifuge (Figure 69c). Ce mouvement a pour conséquence de rapprocher l'agrégat d'une zone de constriction, où il reste confiné. Le gradient de vitesse élevé dans cette partie du contact, pourrait expliquer la détérioration de l'agrégat lorsque ce dernier atteint cette zone. La partie de l'agrégat qui se rapproche de cette zone est ralentie, l'autre extrémité est libre de se déplacer dans le contact lubrifié. Cela provoque alors un deuxième mouvement de rotation à l'agrégat (Figure 69d).



*Figure 69 : L'agrégat piégé dans le contact subit les contraintes mécaniques externes qui dépendent du champ de vitesse imposé par la cinématique de contact. L'agrégat s'éloigne du centre du disque (négativement suivant l'axe Y) sous les effets de la force centrifuge. Par ailleurs, seule la partie de l'agrégat éloignée de la zone de constriction peut se déplacer librement dans le contact lubrifié tandis que la partie de l'agrégat qui est en contact avec la zone de constriction est ralentie ou reste bloquée. Ceci provoque un mouvement de rotation de l'agrégat*

#### 4.5.3. Vitesse moyenne des agrégats et temps de résidence

La vitesse moyenne des agrégats ainsi que le temps de résidence des agrégats sont portés sur la Figure 70 en fonction de la vitesse de glissement. Lorsque les effets de la force centrifuge deviennent trop importants, la vitesse de l'agrégat suivant l'axe Y ne peut plus être négligée et la vitesse totale de l'agrégat est alors prise en considération. Ces expériences montrent que la vitesse de l'agrégat est constante dans le contact lubrifié et augmente avec la vitesse de glissement.

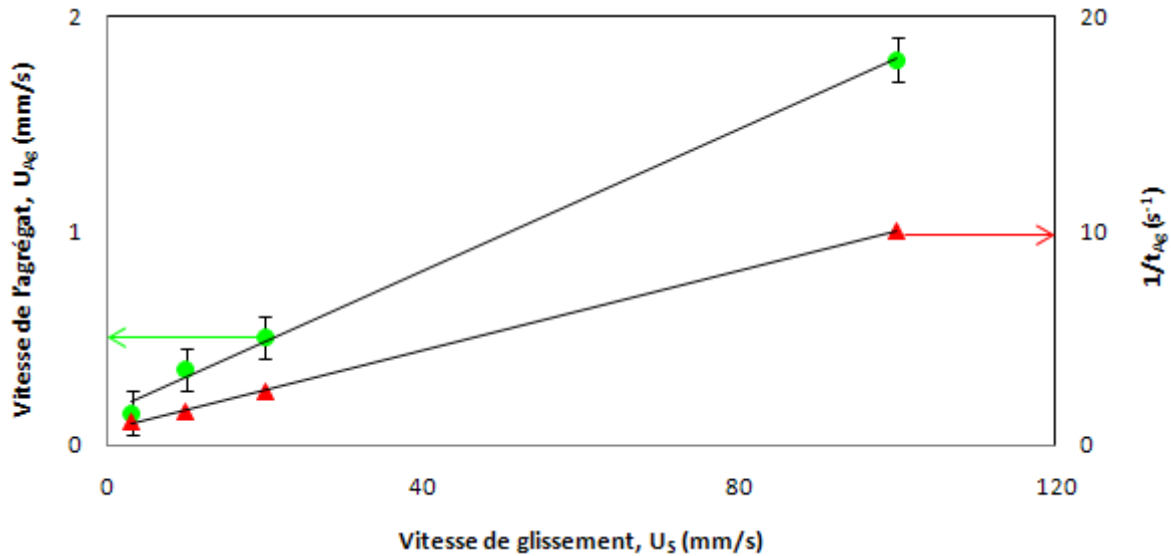
D'après la Figure 70, la vitesse de l'agrégat,  $U_{Ag}$ , peut s'exprimer de la manière suivante :

$$U_{Ag} = \beta_1 * U_S - U_0 \quad (31)$$

avec :

$\beta_1$  est égal à  $1,7 \cdot 10^{-2}$ ,

$U_0$  correspond à la fluctuation moyenne de la vitesse d'entraînement et vaut  $-0,12$  mm/s.



*Figure 70 : Vitesse de l'agrégat et temps de résidence de l'agrégat en fonction de la vitesse de glissement au cours d'une phase de glissement pur. La vitesse de l'agrégat à l'intérieur du contact augmente avec la vitesse de glissement. Ainsi, plus la vitesse de l'agrégat augmente et plus le temps de résidence de l'agrégat diminue*

Le temps de résidence de l'agrégat dans le contact,  $t_{Ag}$ , est un autre paramètre d'intérêt pour caractériser la cinétique de l'agrégation en glissement pur. Il correspond au temps nécessaire à l'agrégat pour traverser la zone de haute pression. Le temps pendant lequel l'agrégat reste immobile près de la zone de constriction et subit « de l'usure » ou de la désagrégation due au cisaillement n'est pas inclus. Le tracé de l'inverse de ce temps en fonction de la vitesse de glissement est aussi présenté dans la Figure 70. On peut voir que :

$$\frac{1}{t_{Ag}} = \frac{U_S}{L_0} + \frac{1}{T_0} \quad (32)$$

avec  $L_0$  la longueur égale à 11 mm, et  $t_0$  le temps caractéristique égal à 1,4 s.

La distance parcourue par l'agrégat est donnée par le produit de  $t_{Ag}$  avec  $U_{Ag}$  et correspond approximativement au diamètre du contact diminué de la largeur de la zone de constriction.

#### 4.5.4. Loi de frottement

Dans la gamme de vitesses de glissement étudiée, le processus d'agrégation au sein du contact lubrifié affecte le comportement en frottement selon une loi similaire à celle présentée dans la section précédente (4.4.). Les valeurs des contraintes de cisaillement  $\tau_{Épais}$  et  $\tau_{Mince}$  sont portées dans la Table 15 en fonction de la vitesse de glissement.

$U_S$ (mm/s)	$\tau_{Épais}$ (MPa)	$H_{Épais}$ (nm)	$\tau_{Mince}$ (MPa)	$H_{Mince}$ (nm)
10	12	12-14	38	3-4
20	11	13-16	35	
100	19	10	44	

*Table 15 : Contraintes de cisaillement  $\tau_{Épais}$  (contrainte en début de glissement pur pour un contact lubrifié avec un film relativement épais) et  $\tau_{Mince}$  (contrainte en fin de glissement pur pour un contact lubrifié avec un film mince de 3-4 nm environ) en fonction de la vitesse de glissement. La contrainte de cisaillement  $\tau_{Épais}$  semble dépendre de la vitesse de glissement : plus la vitesse de glissement augmente et plus la contrainte de cisaillement  $\tau_{Épais}$  augmente. En revanche, la contrainte de cisaillement  $\tau_{Mince}$  est relativement constante autour de 35 MPa  $\pm 5$  MPa et ne dépend pas de la vitesse de glissement. Les épaisseurs respectives sont également indiquées*

La contrainte de cisaillement  $\tau_{Épais}$  vaut 12 MPa pour une vitesse de glissement égale à 10 mm/s, elle vaut 19 MPa lorsque la vitesse de glissement est égale à 100 mm/s, soit plus du double. Ainsi, plus la vitesse de glissement augmente et plus la contrainte de cisaillement  $\tau_{Épais}$  augmente également pour une épaisseur mesurée du même ordre de grandeur. En revanche, la contrainte de cisaillement  $\tau_{Mince}$  présente peu de variation avec la vitesse de glissement et reste proche de 35 MPa  $\pm 5$  MPa.

Ainsi, le comportement en frottement semble être dépendant de la vitesse de glissement pour une épaisseur de film constante et nanométrique. La contrainte de cisaillement  $\tau_{Épais}$  pourrait provenir d'un cisaillement visqueux non-Newtonien de l'interface et cet aspect sera détaillé dans le chapitre suivant.

#### 4.6. Conclusions

La mise en place d'essais en régime stationnaire grâce au tribomètre IRIS permet de caractériser précisément les phénomènes transitoires se produisant lors de la phase de glissement pur et constitue un moyen d'investigation original pour simuler expérimentalement le contact Segments-Chemise. Bien qu'aucun agrégat n'ait été observé dans des conditions de roulement pur, les conditions de glissement pur peuvent conduire à l'apparition d'agrégats qui se déplacent à travers le contact. Ces agrégats glissent sur les deux surfaces (Acier/Silice) mais présentent plus d'adhérence avec la surface en silice. La morphologie de ces agrégats évolue

avec le temps, ce qui affecte le comportement en frottement. Une loi additive combinant une contribution du cisaillement des agrégats avec une contribution du cisaillement d'un mince film de lubrifiant permet d'interpréter l'origine du frottement et de son évolution en fonction du temps de cisaillement.

L'influence de la vitesse en glissement pur a également été étudiée. Quelle que soit la vitesse de glissement utilisée, les mécanismes d'agrégation restent similaires. Dans la gamme étudiée des vitesses de glissement, l'adhérence relative des agrégats aux surfaces est similaire. Le processus d'agrégation au sein du contact lubrifié affecte le comportement en frottement selon une loi additive de même nature. Cependant, la contrainte  $\tau_{\text{Épais}}$  varie avec l'épaisseur et la vitesse de glissement. Cette contrainte pourrait provenir du cisaillement visqueux de l'interface lubrifiée avec un fluide non-Newtonien. Cette question sera élucidée dans la suite.

Quelle que soit l'application, l'optimisation du comportement tribologique d'un contact nécessite une compréhension suffisante des phénomènes physiques s'y produisant. La dynamique des interactions se produisant ainsi que le caractère transitoire de certains phénomènes ont leur importance. À ce titre, les mécanismes d'agrégation des suies dans un contact lubrifié et leur corrélation avec le frottement dans les régimes transitoires d'accélération et de décélération font l'objet du chapitre suivant. L'influence de la nature de la surface sera également analysée.

# Chapitre 5

## Comportement tribologique du film interfacial en régime transitoire et effet de surface

### Sommaire

5.1.	<i>Introduction .....</i>	119
5.2.	<i>Description des phénomènes transitoires.....</i>	119
5.3.	<i>Modélisation des phénomènes transitoires : couplage épaisseur-contrainte .....</i>	121
5.3.1.	Du roulement pur au glissement pur : $t_0 - t_1$ .....	122
5.3.2.	Le glissement pur : de $t_1$ à $t_3$ .....	124
5.3.3.	Remplissage progressif du contact : $t_3 - t_5$ .....	128
5.3.4.	Vers le roulement pur : $t_5 - t_6$ .....	132
5.3.5.	Conclusions .....	133
5.4.	<i>Effet de la vitesse de glissement sur la réponse transitoire .....</i>	134
5.5.	<i>Effet de la nature de la surface sur la réponse transitoire.....</i>	136
5.6.	<i>Conclusions .....</i>	139

## 5.1. Introduction

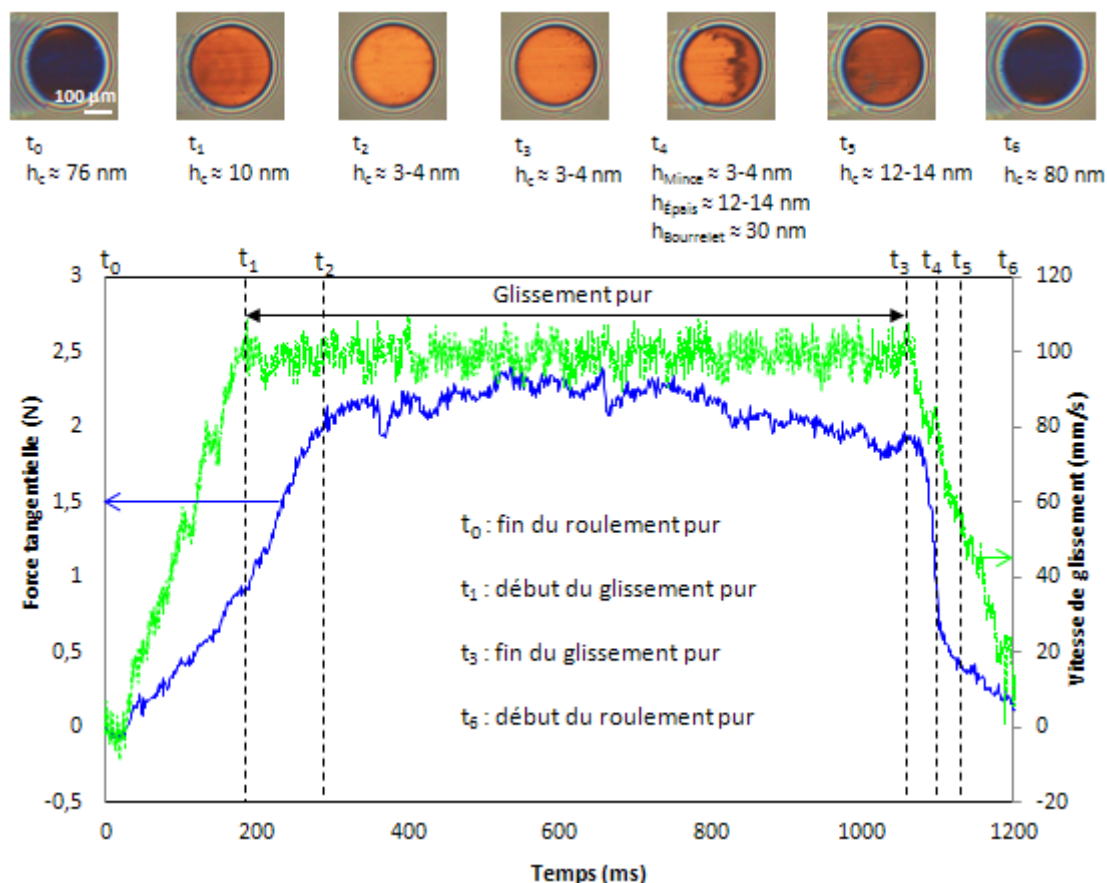
On entend par régime transitoire une phase de durée limitée dans le temps, dans laquelle un système dynamique subit une excitation variable avec le temps. On peut opposer ainsi phénomène transitoire et phénomène permanent : par exemple, on parlera de la phase de démarrage d'un moteur comme d'une phase transitoire où sa vitesse évolue suite à un ordre de mise en rotation. À l'inverse, on qualifiera de régime permanent, ou établi, la phase ultérieure où la vitesse de rotation est stable. Dans un moteur thermique à combustion interne, les phénomènes transitoires associés à des conditions tribologiques évoluant dans le temps surviennent dans de nombreux contacts notamment ceux de la zone SPC. Ils peuvent apparaître durant les phases de démarrage ou d'arrêt du piston, au niveau des points morts haut et bas, ou lorsque des fonctionnements stationnaires sont perturbés par des événements mécaniques internes ou externes. Dans ce chapitre, plusieurs cinématiques trapézoïdales, alternant des phases de roulement pur et de glissement pur via des rampes linéaires de vitesses, ont été utilisées pour simuler le comportement tribologique de divers couples lubrifiant/surfaces à des sollicitations transitoires.

La première partie du chapitre a pour but de nous éclairer sur les réponses transitoires de ces contacts à cinématiques périodiques, lors des phases d'accélération et de décélération entre les phases de roulement pur et de glissement pur, ainsi qu'au changement de sens de rotation des solides (bille/disque). La deuxième partie du chapitre propose une modélisation de la force de frottement générée par les interfaces lubrifiées lors de ces régimes transitoires en couplant les mesures d'épaisseur de film d'huile à celles de la contrainte de cisaillement associée. En appui sur ces interprétations physiques, la troisième partie et la quatrième partie du chapitre discuteront respectivement des effets de vitesse et de surface.

## 5.2. Description des phénomènes transitoires

Cette partie du chapitre concerne l'étude des processus de lubrification qui se produisent entre les phases de roulement pur et de glissement pur, plus précisément lors des phases de changement de sens du disque. Ceux-ci sont détaillés dans le cas de l'huile vieillie, lubrifiant un contact Bille Acier/Disque Silice et pour une cinématique dont la phase de glissement pur est réalisée à une vitesse de glissement  $U_s$  égale à 100 mm/s. L'évolution temporelle de la force tangentielle permet de définir précisément les temps caractéristiques associés aux phénomènes transitoires observés, comme des signatures de la réponse tribologique du lubrifiant confiné, lors d'un cycle complet constitué d'une phase de glissement pur (précisément analysée dans le chapitre précédent) et des phases d'accélération/décélération (Figure 71). Dans la suite du chapitre, on parlera d'accélération (resp. de décélération) lorsque la vitesse de glissement augmente (resp. lorsque la vitesse de glissement diminue).





**Figure 71 : Évolution de la force tangentielle et de la vitesse de glissement en fonction du temps pour l'huile vieillie et pour le couple Bille Acier/Disque Silice. Différents temps caractéristiques peuvent être définis à partir de cette courbe :  $t_0$  à  $t_6$ . Les interférogrammes associés à chaque temps sont présentés ainsi que leurs épaisseurs respectives**

L'analyse de la distribution locale de l'épaisseur du film lubrifiant issue des interférogrammes de contact est effectuée pour chacun de ces temps caractéristiques afin de comprendre les mécanismes de lubrification mis en jeu.

Le temps  $t_0$  marque la fin de la période de roulement pur. Le contact est alors lubrifié par un film d'huile dont l'épaisseur de 76 nm correspond à celle prédite par la théorie de Hamrock-Dowson. À cet instant précis, il n'y a pas de glissement relatif entre la bille et le disque. La force de frottement est donc nulle. La vitesse de glissement augmente ensuite linéairement (resp. la vitesse d'entraînement décroît linéairement) jusqu'à la valeur maximale de 100 mm/s, atteinte à l'instant  $t_1$  (resp. pour s'annuler à l'instant  $t_1$ ) ;

Ainsi,  $t_1$ , correspond au début du glissement pur qui ponctue la fin d'une première phase de montée linéaire de la force tangentielle. À cet instant, un film homogène d'épaisseur 10 nm sépare les deux surfaces ;

$t_2$  est défini comme le moment de la période de glissement où la force tangentielle commence à se stabiliser. À cet instant, l'agrégat formé entre  $t_1$  et  $t_2$  (cf. Chapitre 4) est complètement évacué du contact. L'ensemble du contact est alors lubrifié par un film mince d'huile d'environ 3-4 nm ;

$t_3$  correspond au début de la diminution de l'effort tangentiel qui coïncide avec la fin de la phase de glissement pur. À cet instant, l'ensemble du contact reste lubrifié par un film mince d'huile d'environ 3-4 nm pour la vitesse de glissement considérée (ici 100 mm/s). L'intervalle de temps  $[t_1, t_3]$  couvre la période de glissement pur dont l'analyse a été détaillée au chapitre précédent ;

Une première rupture de pente infléchissant la chute brutale de la force tangentielle est observée au temps  $t_4$ . Le contact demeure soumis à une vitesse d'entraînement qui continue d'augmenter progressivement. À cet instant, le contact est hétérogène et on peut distinguer trois zones de couleur différente, correspondant à des épaisseurs respectivement égales à 12-14 nm, 30 nm et 3-4 nm, dans la direction de la vitesse d'entraînement ;

Au temps  $t_5$ , la force tangentielle décroît selon une pente dont la valeur absolue est identique à celle caractérisant son augmentation entre  $t_0$  et  $t_1$ . À cet instant, les surfaces sont séparées par un film dont l'épaisseur est de l'ordre de 12-14 nm, indiquant le remplissage complet du contact par un volume de lubrifiant qui augmente jusqu'à ce que la vitesse d'entraînement soit maximale ;

Au temps  $t_6$ , s'amorce une nouvelle phase de roulement pur où la vitesse de glissement s'annule conduisant à une force tangentielle nulle. À cet instant, l'épaisseur de film d'huile vaut environ 80 nm comme au temps  $t_0$ .

La mesure simultanée de la force tangentielle et l'observation des interférogrammes de contact sur un cycle comprenant une phase de glissement pur et les phases d'accélération et de décélération lors du changement de sens de rotation du disque nous permettront d'identifier précisément les mécanismes de frottement associés à ces régimes transitoires.

### **5.3. Modélisation des phénomènes transitoires : couplage épaisseur-contrainte**

Afin de mieux analyser les phénomènes transitoires, il est possible de représenter sous la forme d'un cycle contrainte de cisaillement/vitesse de glissement, les données issues de la Figure 71 puis de les corrélérer aux interférogrammes de contact. L'ensemble des résultats est présenté sur la Figure 72.

Les paragraphes qui suivent proposent une modélisation des phénomènes transitoires pour l'ensemble des temps caractéristiques définis précédemment.

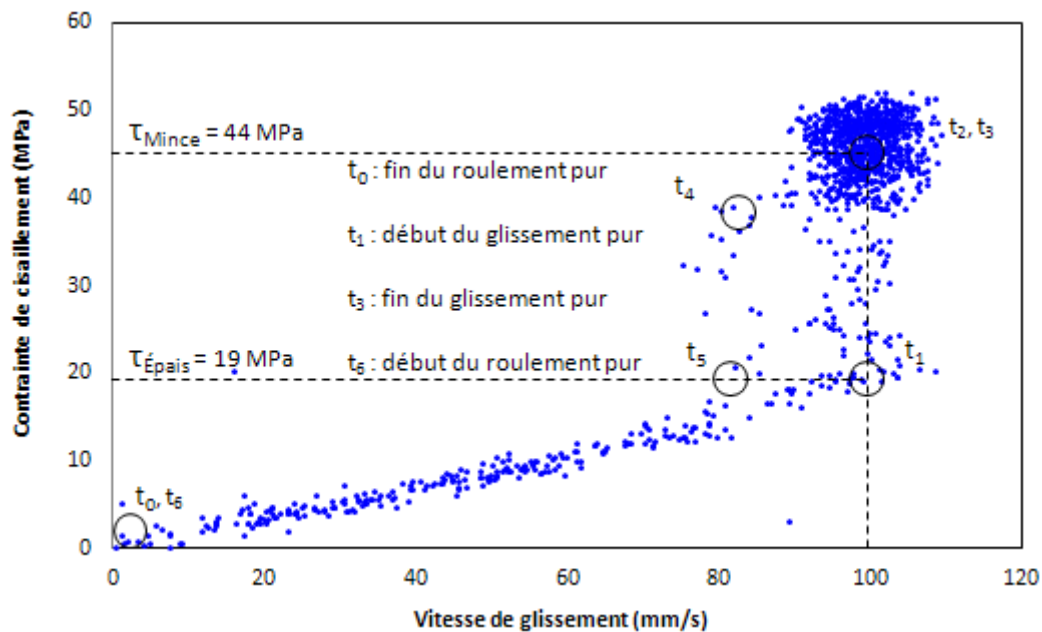


Figure 72 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de glissement pour l'huile vieillie et pour le couple Bille Acier/Disque Silice. Dans la phase de glissement pur, entre  $t_1$  et  $t_3$ ,  $U_s = 100$  mm/s. Sont repérés sur ce cycle, les instants  $t_1$ , ...  $t_6$  ainsi que les contraintes  $\tau_{\text{Épais}}$  et  $\tau_{\text{Mince}}$ , définies au chapitre précédent

### 5.3.1. Du roulement pur au glissement pur : $t_0$ - $t_1$

La Figure 73 présente l'évolution de l'épaisseur de film d'huile mesurée en fonction de la vitesse d'entraînement entre  $t_0$  et  $t_1$ .

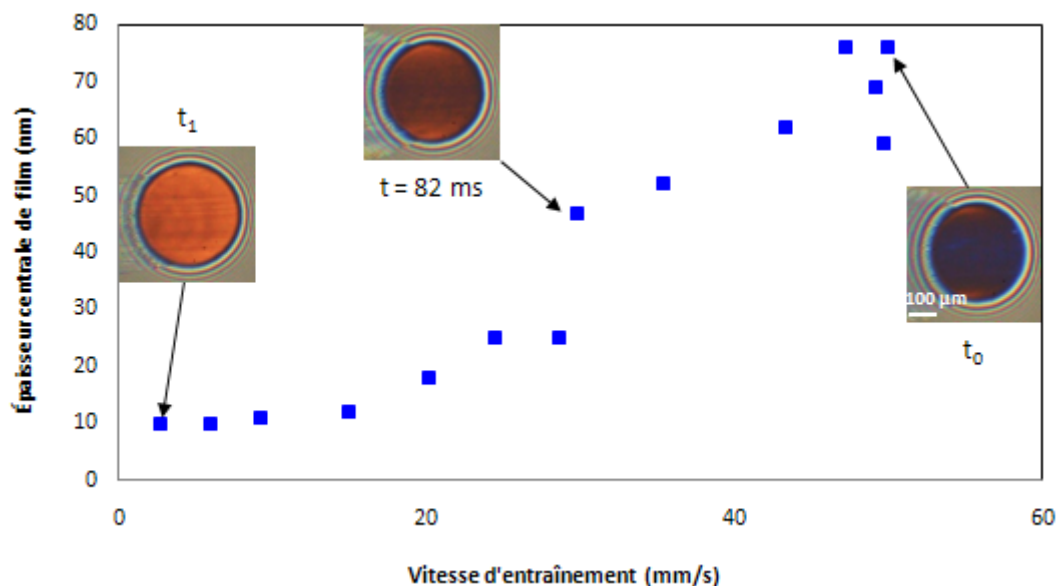


Figure 73 : Évolution de l'épaisseur centrale de film d'huile en fonction de la vitesse d'entraînement entre  $t_0$  et  $t_1$  pour l'huile vieillie, pour le couple Bille Acier/Disque Silice pendant la phase transitoire entre le roulement pur et le glissement pur. L'épaisseur de film augmente avec la vitesse d'entraînement. Elle vaut 76 nm à l'instant  $t_0$  ( $U_E = 50$  mm/s) et environ 10 nm en  $t_1$  ( $U_E = 0$  mm/s)

L'épaisseur centrale de film augmente avec la vitesse d'entraînement.  $t_0$  correspond à la fin du roulement pur ( $U_E = 50$  mm/s) et vaut 76 nm.  $t_1$  correspond au début du glissement pur ( $U_E=0$ mm/s) et vaut environ 10 nm.

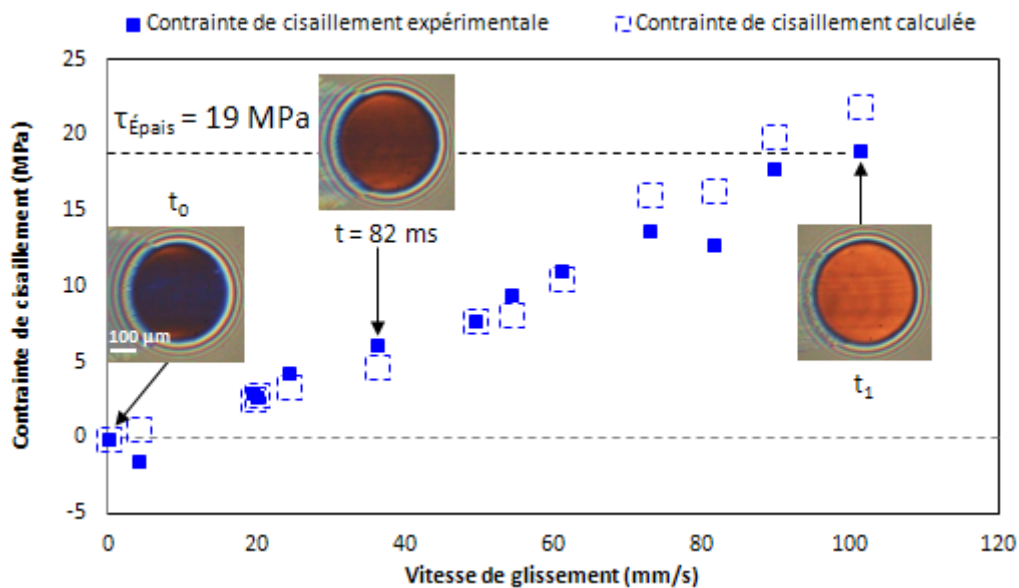
La contrainte calculée à partir des mesures simultanées de la force de frottement et de l'aire de contact est tracée en fonction de la vitesse de glissement à la Figure 74.

Nous avons montré au chapitre 3 que les courbes de Stribeck et de traction peuvent être interprétées en terme de cisaillement piézovisqueux du lubrifiant considéré comme un fluide rhéofluidifiant dont la viscosité suit une loi de Cross. Il est alors possible, à partir de cette loi de Cross et de la mesure de l'épaisseur instantanée, de calculer la contrainte visqueuse associée :

$$\tau(t) = \eta_{\text{Cross}}(t) * \frac{U_s(t)}{h(t)} \quad (33)$$

avec  $\tau$  la contrainte de cisaillement visqueuse [Pa], et  $\eta_{\text{Cross}}$  la viscosité sous pression issue des courbes de Stribeck et de traction en régime stationnaire [Pa.s].

L'évolution de la contrainte ainsi calculée est présentée en fonction de la vitesse de glissement sur la Figure 74.



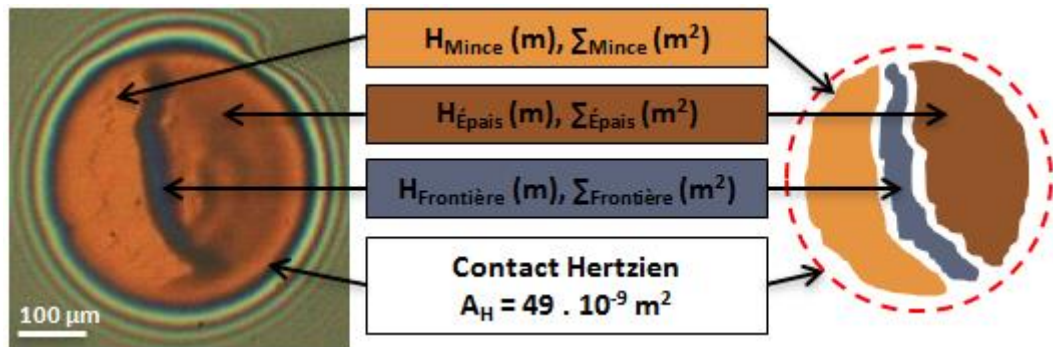
*Figure 74 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de glissement entre  $t_0$  et  $t_1$  pour l'huile vieillie, pour le couple Bille Acier/Disque Silice. La contrainte de cisaillement calculée (carrés vides) est en bon accord avec la contrainte de cisaillement expérimentale (carrés pleins).  $\tau_{\text{Épais}}$  est la contrainte de cisaillement visqueuse calculée en  $t_1$*

Le très bon accord entre les points expérimentaux et les valeurs calculées en considérant que la force tangentielle est due à l'écoulement visqueux d'un fluide non-Newtonien régi par une loi de Cross, semble valide, y compris dans ces régimes transitoires. Ainsi, on montre que la

contrainte  $\tau_{\text{Épais}}$  correspond à la contrainte de cisaillement visqueuse d'un fluide piézovisqueux non-Newtonien au taux de cisaillement atteint au début de la période de glissement pur (instant  $t_1$ ).

### 5.3.2. Le glissement pur : de $t_1$ à $t_3$

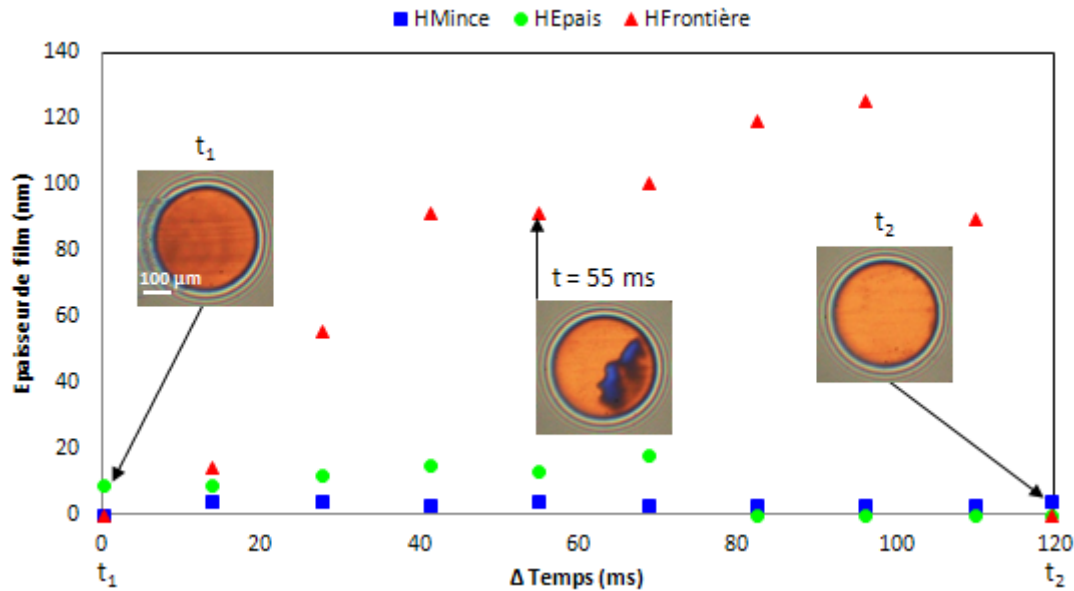
Les instants  $t_1$  et  $t_3$  correspondent respectivement au début du glissement pur ( $U_S = 100$  mm/s) et à la fin du glissement pur ( $U_S = 100$  mm/s). Ainsi durant l'intervalle  $[t_1, t_3]$ , la vitesse d'entraînement  $U_E$  est nulle et la vitesse de glissement  $U_S$  vaut 100 mm/s : un volume d'huile constant est piégé dans le contact puis un agrégat se forme et se déplace au sein du contact. Nous avons montré dans le chapitre 4 que l'évolution de la contrainte de cisaillement interfacial résulte de deux contributions,  $\tau_{\text{Épais}}$  et  $\tau_{\text{Mince}}$ , où  $\tau_{\text{Épais}}$  correspond à la contrainte de cisaillement visqueuse, moyennée sur la zone  $A_{\text{Épais}}$ . Une analyse plus fine des interférogrammes montre que la distribution spatiale de l'épaisseur du film lubrifiant peut se définir par trois zones d'intérêt qui prennent notamment en compte la présence d'une surépaisseur constituant la frontière entre la zone de plus faible épaisseur et celle d'épaisseur intermédiaire comme illustré sur la Figure 75.



*Figure 75 : Interférogramme de contact divisé en trois régions d'intérêt. La première région d'intérêt,  $\Sigma_{\text{Mince}}$ , est une zone lubrifiée par un film mince d'huile de 3 à 4 nm. La deuxième région d'intérêt,  $\Sigma_{\text{Épais}}$ , est une zone lubrifiée par un film d'huile plus épais que dans la première région d'intérêt, dont l'épaisseur est comprise entre 12 et 14 nm. La troisième région d'intérêt,  $\Sigma_{\text{Frontière}}$ , est une zone lubrifiée par un film d'huile beaucoup plus épais que les autres régions d'intérêt (épaisseur comprise entre 14 et 130 nm) qui marque la transition entre l'aire  $\Sigma_{\text{Mince}}$  et  $\Sigma_{\text{Épais}}$*

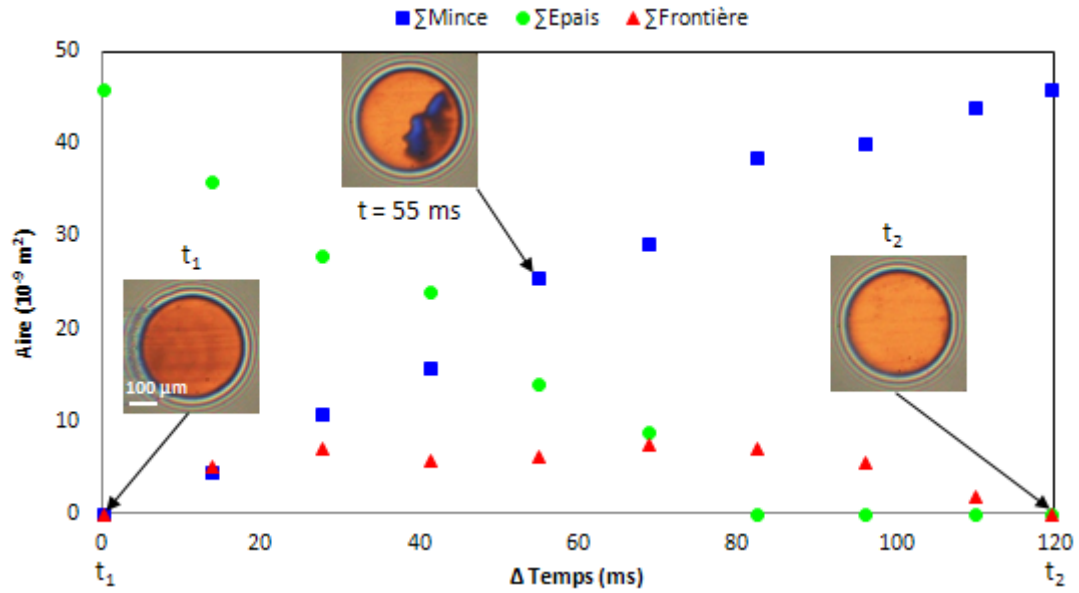
La première région d'intérêt, notée  $\Sigma_{\text{Mince}}$ , ne présente pas d'agrégats visibles. Elle est lubrifiée par un film mince d'huile ayant une épaisseur d'environ 3 à 4 nm. La deuxième région d'intérêt, notée  $\Sigma_{\text{Épais}}$ , est une zone contenant des agrégats, lubrifiée avec un film d'huile plus épais que la première région d'intérêt et ayant une épaisseur intermédiaire comprise entre 12 et 14 nm. Enfin, la troisième région d'intérêt, notée  $\Sigma_{\text{Frontière}}$ , est une zone contenant des agrégats, dans laquelle la distribution spatiale d'épaisseur de film lubrifiant atteint sa valeur maximale comprise entre 14 et 130 nm. Des agrégats de taille variable peuvent se former dans la deuxième et troisième région d'intérêt.

La Figure 76 présente l'évolution temporelle des épaisseurs de film d'huile,  $H_{\text{Mince}}$ ,  $H_{\text{Épais}}$  et  $H_{\text{Frontière}}$  caractéristiques des trois régions d'intérêt d'aire  $\Sigma_{\text{Mince}}$ ,  $\Sigma_{\text{Épais}}$  et  $\Sigma_{\text{Frontière}}$ . Entre  $t_1$  et  $t_2$ , les épaisseurs  $H_{\text{Mince}}$  et  $H_{\text{Épais}}$  restent constantes et valent respectivement 3-4 nm et 12-14 nm. Enfin, l'épaisseur de film  $H_{\text{Frontière}}$  atteint un maximum de 130 nm à  $t = 96$  ms, puis diminue jusqu'à ce que l'agrégat soit complètement expulsé du contact en  $t_2$ . Entre  $t_2$  et  $t_3$ , il n'y a plus d'agrégats dans le contact. L'ensemble de la zone de Hertz est lubrifié par un film d'épaisseur,  $H_{\text{Mince}}$ , d'environ 3-4 nm.



*Figure 76 : Évolution de l'épaisseur de film d'huile suivant les trois régions d'intérêt  $\Sigma_{\text{Mince}}$ ,  $\Sigma_{\text{Épais}}$  et  $\Sigma_{\text{Frontière}}$  en fonction du temps entre  $t_1$  et  $t_2$  pour l'huile vieillie, pour le couple Bille Acier/Disque Silice.  $H_{\text{Mince}}$  reste constant et vaut 3-4 nm,  $H_{\text{Épais}}$  reste constant également et vaut 12-14 nm.  $H_{\text{Frontière}}$  augmente jusqu'à 130 nm puis diminue jusqu'à ce que l'agrégat soit complètement expulsé du contact en  $t_2$*

La Figure 77 montre l'évolution des aires des différentes zones du contact  $\Sigma_{\text{Mince}}$ ,  $\Sigma_{\text{Épais}}$  et  $\Sigma_{\text{Frontière}}$  en fonction du temps. Entre  $t_1$  et  $t_2$ ,  $\Sigma_{\text{Mince}}$  augmente progressivement pour couvrir 100% de l'aire de Hertz en  $t_2$ . Parallèlement,  $\Sigma_{\text{Épais}}$  égale l'aire du contact Hertzien en  $t_1$  et diminue avec le temps jusqu'à s'annuler à  $t = 82$  ms.  $\Sigma_{\text{Frontière}}$  augmente durant la période de glissement pur, se stabilise autour de  $8 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$  puis devient nulle en  $t_2$  lorsque l'agrégat est complètement expulsé du contact. Entre  $t_2$  et  $t_3$ , il n'y a plus d'agrégat dans le contact,  $\Sigma_{\text{Mince}}$  reste constant et occupe 100 % du contact.



*Figure 77 : Évolution des aires  $\Sigma_{Mince}$ ,  $\Sigma_{Épais}$  et  $\Sigma_{Frontière}$  en fonction du temps entre  $t_1$  et  $t_2$  pour l'huile vieillie, pour le couple Bille Acier/Disque Silice. En  $t_1$ , un film homogène occupe tout le contact et  $\Sigma_{Épais} = A_H$  où  $A_H$  est l'aire du contact Hertzien. Entre  $t_1$  et  $t_2$ ,  $\Sigma_{Épais}$  diminue tandis que  $\Sigma_{Mince}$  augmente.  $\Sigma_{Frontière}$  croît également jusqu'à  $8.10^9 \text{ m}^2$  (soit un recouvrement de 17 % du contact) puis s'annule en  $t_2$ . À cet instant il n'y a plus d'agréats visibles dans le contact, et  $\Sigma_{Mince} = A_H$*

Dans le chapitre précédent, le comportement tribologique du film interfacial en glissement pur a été modélisé à l'aide d'une loi additive appelée ci-dessous :

$$\tau(t) = \tau_{Mince} * \frac{A_{Mince}(t)}{A_H} + \tau_{Épais} * \frac{A_{Épais}(t)}{A_H} \quad (34)$$

avec :  $A_H = A_{Mince} + A_{Épais}$ .

Dans cette configuration, la contrainte de cisaillement,  $\tau_{Épais}$ , est celle correspondant au cisaillement piézovisqueux du lubrifiant sous pression et à la vitesse de déformation atteinte à l'instant  $t_1$  et la contrainte,  $\tau_{Mince}$ , est la contrainte de cisaillement interfacial, au temps  $t_2$ . La description du régime transitoire peut être affinée en décomposant un interférogramme de contact en trois régions d'intérêt  $\Sigma_{Mince}$ ,  $\Sigma_{Épais}$  et  $\Sigma_{Frontière}$ . Les régions d'aires  $\Sigma_{Épais}$  et  $\Sigma_{Frontière}$  contribuent à la force de frottement de façon indépendante via le cisaillement visqueux du lubrifiant évoluant avec la vitesse de déformation selon une loi de Cross identifiée au chapitre 3. La région d'aire  $\Sigma_{Mince}$  contribue à la force de frottement par un cisaillement interfacial plastique, supposé indépendant de la vitesse de glissement et du temps. La loi additive de frottement proposée s'écrit alors :

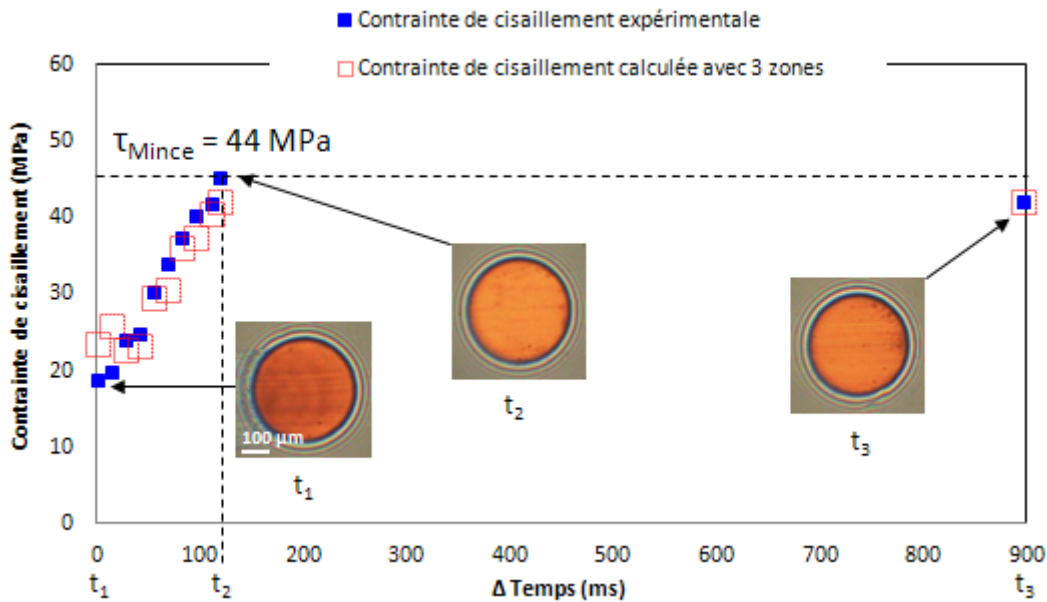


$$\tau(t) = \tau_{Mince} * \frac{\Sigma_{Mince}(t)}{A_H} + \tau_{Épais}(t) * \frac{\Sigma_{Épais}(t)}{A_H} + \tau_{Frontière}(t) * \frac{\Sigma_{Frontière}(t)}{A_H} \quad (35)$$

$$\begin{aligned} \tau(t) = \tau_{Mince} * \frac{\Sigma_{Mince}(t)}{A_H} + \eta_{Cross,Épais}(t) * \frac{U_S(t)}{H_{Épais}(t)} * \frac{\Sigma_{Épais}(t)}{A_H} \\ + \eta_{Cross,Frontière}(t) * \frac{U_S(t)}{H_{Frontière}(t)} * \frac{\Sigma_{Frontière}(t)}{A_H} \end{aligned} \quad (36)$$

avec :  $A_H = \Sigma_{Mince} + \Sigma_{Épais} + \Sigma_{Frontière}$ ,  $\Sigma_{Mince} = A_{Mince}$  et  $A_{Épais} = \Sigma_{Épais} + \Sigma_{Frontière}$ .

Les contraintes de cisaillement calculées à partir de l'équation (36) en utilisant les mesures des épaisseurs  $H_{Mince}$ ,  $H_{Épais}$ ,  $H_{Frontière}$  et des aires  $\Sigma_{Mince}$ ,  $\Sigma_{Épais}$ ,  $\Sigma_{Frontière}$  sont représentées sur la Figure 78.



*Figure 78 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de glissement entre  $t_1$  et  $t_3$  pour l'huile vieillie, lubrifiant un contact Bille Acier/Disque Silice. La contrainte de cisaillement calculée en distinguant trois zones dans le contact caractérisées par trois niveaux d'épaisseur moyens est en bon accord avec la contrainte de cisaillement expérimentale (carrés pleins) : le frottement peut être physiquement relié à la rhéologie du lubrifiant sous pression dans le contact.  $\tau_{Épais}$  correspond au cisaillement visqueux du lubrifiant confiné à la vitesse de déformation atteinte à l'instant  $t_1$  et  $\tau_{Mince}$  est la contrainte de cisaillement mesurée en  $t_2$*

Entre  $t_2$  et  $t_3$ , l'épaisseur de film d'huile dans le contact reste constante (3-4 nm) de même que la contrainte de cisaillement qui vaut  $\tau_{Mince}$ . Cette contrainte correspond vraisemblablement au cisaillement des couches adsorbées de surface sous pression d'épaisseur 3-4 nm. La valeur de  $\tau_{Mince}$  (44 MPa soit  $\mu = 0,14$ ) est cohérente avec la valeur du coefficient de frottement,  $\mu_{lim}$ , issue des courbes de Stribeck présentées au chapitre 3 : de 0,2 à 0,3 pour le couple de surface Bille Acier/Disque Silice.



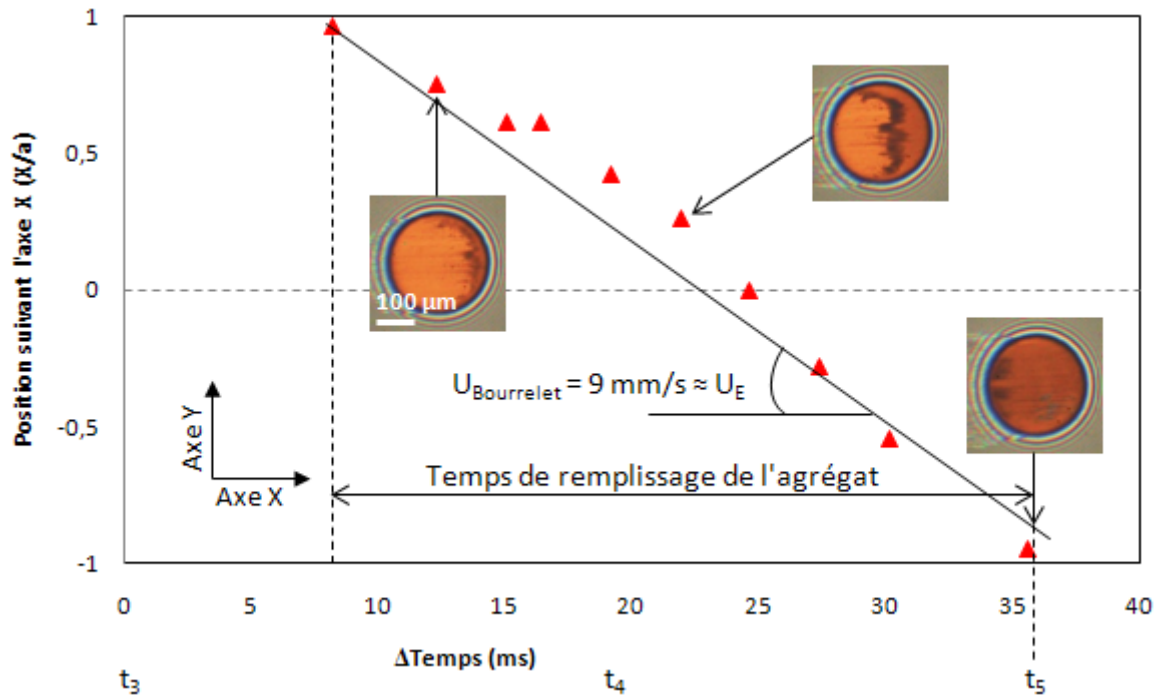
La Figure 78 montre que la contrainte de cisaillement calculée avec trois régions d'intérêt (carrés vides) est en bon accord avec les valeurs expérimentales (carrés pleins) mesurées lors de la phase de glissement pur. De l'analyse proposée, on peut conclure les points suivants :

- Une partie de la zone de haute pression du contact est lubrifiée, en régime limite, par des couches adsorbées dont la structure est liée à la fois à la nature du lubrifiant et à celle des surfaces. La partie complémentaire du contact est lubrifiée par un film d'huile complet. Les aires de ces différentes régions varient en fonction du temps de cisaillement, le contact passant très rapidement (100 ms pour une vitesse de glissement  $U_s = 100 \text{ mm/s}$ ), d'un régime de lubrification EHD à un régime de lubrification limite.
- Dans la zone du contact lubrifiée par un film complet, la distribution spatiale de l'épaisseur du film lubrifiant, approchée ici par deux niveaux  $H_{\text{Épais}}$  et  $H_{\text{Frontière}}$ , gouverne la vitesse de déformation locale et donc l'écoulement visqueux associé.
- La force de frottement résulte à la fois du cisaillement du lubrifiant sous pression qui se comporte comme un liquide non-Newtonien dont la viscosité suit une loi de Cross et du cisaillement d'un film limite.

### 5.3.3. Remplissage progressif du contact : $t_3$ - $t_5$

L'observation des interférogrammes durant la phase de glissement pur, entre  $t_1$  et  $t_3$ , révèle qu'une fraction d'agrégats sort du contact puis reste bloquée, en l'absence d'entraînement, à l'extérieur, sur le bord droit du contact correspondant à la zone de convergent lors de la phase de décélération qui suit. À partir de  $t_3$ , la cinématique de la vitesse d'entraînement commence à augmenter. Le contact qui n'est plus en glissement pur se remplit progressivement en lubrifiant (Figure 79). L'accumulation de matière, rentre immédiatement dans le contact, de la droite vers la gauche sur les interférogrammes, en formant un bourrelet. Celui-ci ne doit pas être confondu avec l'agrégat formé au cours du glissement pur où les particules et les molécules, initialement dispersées au sein du contact, s'agglomèrent en agrégats dont la mobilité est liée à leur affinité relative vis-à-vis des surfaces.

La Figure 79 montre la position du centre de gravité du bourrelet le long de l'axe X en fonction du temps, au cours de la phase de remplissage du contact entre  $t_3$  et  $t_5$ . La trajectoire du bourrelet est essentiellement linéaire le long de l'axe X. Entre les instants  $t_3$  et  $t_5$ , le bourrelet, déjà constitué de particules et de molécules agrégées, pénètre dans le contact dans un état initial agrégé et sa mobilité est corrélée à la vitesse d'entraînement. La vitesse instantanée du bourrelet est égale à 9 mm/s et est très proche de la vitesse instantanée de l'entraînement qui vaut environ 10 mm/s.



**Figure 79 : Position du centre de gravité du bourrelet le long de l'axe X en fonction du temps, au cours de la phase de remplissage du contact entre  $t_3$  et  $t_5$ . La trajectoire du bourrelet est essentiellement linéaire le long de l'axe X. La vitesse instantanée du bourrelet est très proche de la vitesse instantanée d'entraînement. Le diamètre du contact Bille Acier/Disque Silice est de  $250\text{ }\mu\text{m}$**

Le contact est à nouveau composé de trois zones d'épaisseurs et d'aires différentes (cf. Figure 80 au temps correspondant à  $t_4$ ). Cependant, elles n'ont pas la même origine physique que les trois zones définies lors de la phase de glissement pur, entre  $t_1$  et  $t_3$ , et résultent de la variation locale de l'épaisseur du film lubrifiant liée à l'augmentation de la vitesse d'entraînement [24].

C'est pourquoi, il est alors pertinent d'analyser la réponse en frottement lors de cette phase de remplissage du contact en considérant la rhéologie du lubrifiant dans chacune des trois régions d'intérêt,  $\sum_{\text{Mince}}$ ,  $\sum_{\text{Bourrelet}}$  et  $\sum_{\text{Épais}}$  :

- $\sum_{\text{Mince}}$  : zone de faible épaisseur ( $H_{\text{Mince}}$ ) correspondant au film limite lubrifiant le contact à la fin du glissement pur.
- $\sum_{\text{Bourrelet}}$  : zone d'épaisseur variable ( $H_{\text{Bourrelet}}$ ) correspondant à l'accumulation de matière formée au cours de la phase de glissement pur et située dans le convergent. Ce bourrelet se déplace dans le contact à une vitesse corrélée à la vitesse d'entraînement.
- $\sum_{\text{Épais}}$  : zone du contact où l'épaisseur,  $H_{\text{Épais}}$  varie peu au cours du temps et ne dépend pas de la vitesse d'entraînement.

La Figure 80 présente l'évolution de l'épaisseur de film d'huile en fonction du temps pour les trois régions d'intérêt  $\sum_{\text{Mince}}$ ,  $\sum_{\text{Bourrelet}}$  et  $\sum_{\text{Épais}}$ . Rappelons que  $t_3$  correspond à la fin du glissement pur ( $U_S = 100\text{ mm/s}$ ). Entre  $t_3$  et  $t_5$ , l'épaisseur  $H_{\text{Mince}}$  reste constante à un niveau 3-4 nm tout comme l'épaisseur  $H_{\text{Épais}}$  qui vaut 12-14 nm. Enfin, l'épaisseur de film relative à  $H_{\text{Bourrelet}}$  augmente jusqu'à 60 nm à  $t = 30\text{ ms}$ , puis diminue jusqu'à 16 nm lorsque l'accumulation de matière est éjectée du contact en  $t_5$ . À l'instant  $t_5$ , le film élastohydrodynamique est complètement formé et sépare le contact.

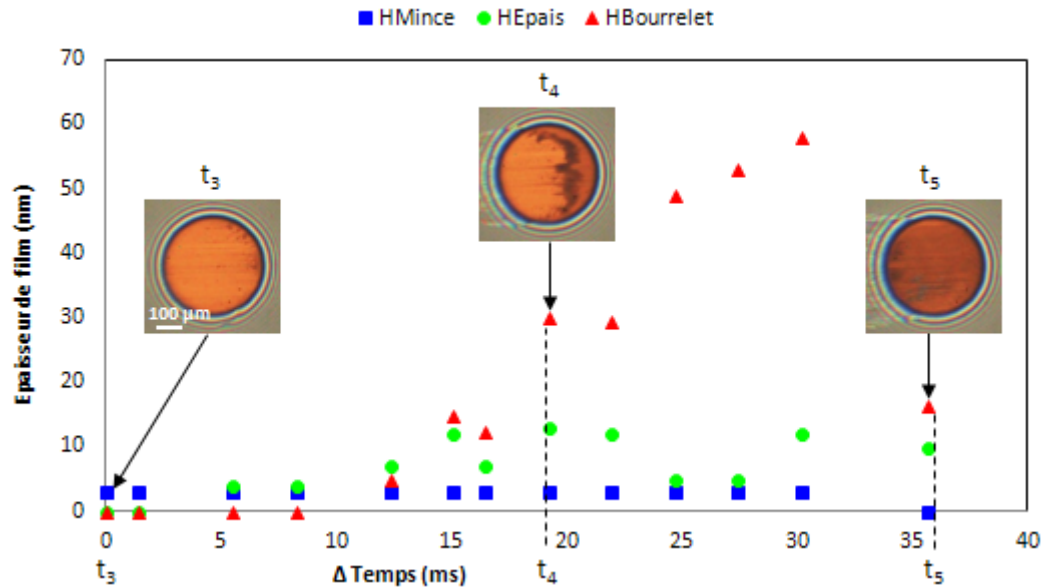


Figure 80 : Évolution de l'épaisseur de film d'huile dans les trois régions d'intérêt  $\Sigma_{Mince}$ ,  $\Sigma_{Épais}$  et  $\Sigma_{Bourrelet}$  en fonction du temps entre  $t_3$  et  $t_5$  pour l'huile vieillie, lubrifiant un contact Bille Acier/Disque Silice.  $H_{Mince}$  et  $H_{Épais}$  restent constantes. Elles valent respectivement 3-4 nm et 12-14 nm.  $H_{Bourrelet}$  augmente jusqu'à 60 nm puis diminue jusqu'à ce qu'un film homogène soit complètement formé, en  $t_5$

La Figure 81 montre l'évolution des surfaces lubrifiées  $\Sigma_{Mince}$ ,  $\Sigma_{Bourrelet}$  et  $\Sigma_{Épais}$  en fonction du temps. Entre  $t_3$  et  $t_5$ ,  $\Sigma_{Mince}$  diminue et s'annule en  $t_5$ .  $\Sigma_{Épais}$  augmente et égale  $A_H$  en  $t_5$ .  $\Sigma_{Bourrelet}$  augmente au cours du remplissage du contact, se stabilise autour de  $10^{-8} \text{ m}^2$  puis s'annule à l'instant  $t_5$ , lorsque le contact est lubrifié par un film complet et homogène.

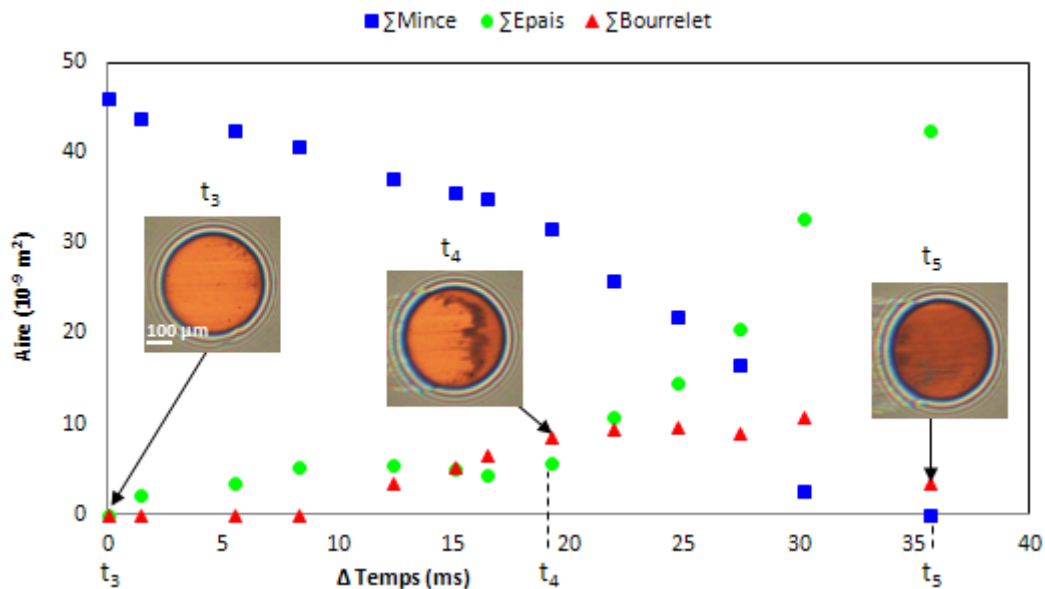


Figure 81 : Évolution de la surface  $\Sigma_{Mince}$ ,  $\Sigma_{Épais}$  et  $\Sigma_{Bourrelet}$  en fonction du temps entre  $t_3$  et  $t_5$  pour l'huile vieillie, lubrifiant un contact Bille Acier/Disque Silice. À  $t_3$ , il n'y a pas d'agrégats visibles dans le contact et donc  $\Sigma_{Mince}$  recouvre la totalité du contact Hertzien. À  $t_5$ , un film homogène occupe toute la zone de Hertz et donc  $\Sigma_{Épais} = A_H$ .  $\Sigma_{Bourrelet}$  augmente jusqu'à  $10^{-8} \text{ m}^2$  (soit 21 % du contact) puis diminue jusqu'au remplissage complet du contact en  $t_5$

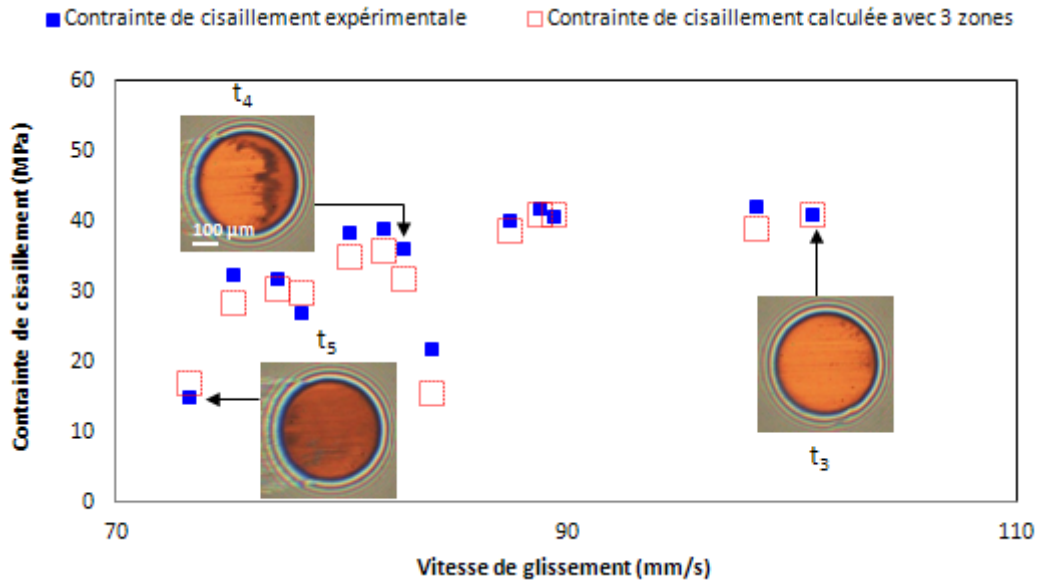
Nous supposons que les régions  $\Sigma_{\text{Bourrelet}}$  et  $\Sigma_{\text{Épais}}$ , contribuent indépendamment au frottement via l'écoulement du lubrifiant qu'elles contiennent, dont la viscosité est donnée par la loi de Cross identifiée au chapitre 3. L'épaisseur cisailée est  $H_{\text{Bourrelet}}$  et  $H_{\text{Épais}}$ , respectivement pour les zones d'aire  $\Sigma_{\text{Bourrelet}}$  et  $\Sigma_{\text{Épais}}$ . La loi additive de frottement proposée s'écrit alors :

$$\tau(t) = \tau_{\text{Mince}} * \frac{\Sigma_{\text{Mince}}(t)}{A_H} + \tau_{\text{Épais}}(t) * \frac{\Sigma_{\text{Épais}}(t)}{A_H} + \tau_{\text{Bourrelet}}(t) * \frac{\Sigma_{\text{Bourrelet}}(t)}{A_H} \quad (37)$$

$$\begin{aligned} \tau(t) = \tau_{\text{Mince}} * \frac{\Sigma_{\text{Mince}}(t)}{A_H} + \eta_{\text{Cross,Épais}}(t) * \frac{U_S(t)}{H_{\text{Épais}}(t)} * \frac{\Sigma_{\text{Épais}}(t)}{A_H} \\ + \eta_{\text{Cross,Bourrelet}}(t) * \frac{U_S(t)}{H_{\text{Bourrelet}}(t)} * \frac{\Sigma_{\text{Bourrelet}}(t)}{A_H} \end{aligned} \quad (38)$$

avec :  $A_H = \Sigma_{\text{Mince}} + \Sigma_{\text{Épais}} + \Sigma_{\text{Bourrelet}}$  et  $A_{\text{Épais}} = \Sigma_{\text{Épais}} + \Sigma_{\text{Bourrelet}}$ .

$\tau_{\text{Épais}}$  et  $\tau_{\text{Bourrelet}}$  sont les contraintes de cisaillement visqueuses calculées à chaque instant à l'aide de la modélisation par une loi de Cross issue des courbes de Stribeck et de traction en régime stationnaire présentée au chapitre 3. La contrainte de cisaillement expérimentale et la contrainte de cisaillement déduite de l'équation (38) sont présentées sur la Figure 82.



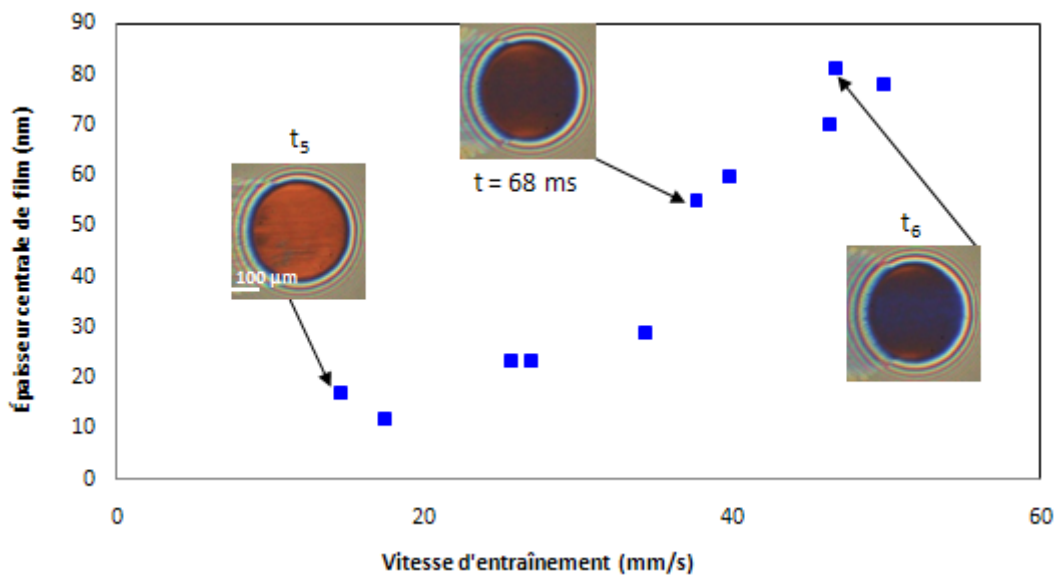
**Figure 82 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de glissement entre  $t_3$  et  $t_5$  pour l'huile vieillie, lubrifiant le contact Bille Acier/Disque Silice. La contrainte de cisaillement calculée avec trois zones (carrés vides) est en bon accord avec la contrainte de cisaillement expérimentale (carrés pleins) : le frottement est à nouveau relié à la rhéologie du lubrifiant sous pression dans le contact**

La Figure 82 montre un excellent accord entre la contrainte de cisaillement calculée avec trois régions d'intérêt (carrés vides) et les valeurs expérimentales (carrés pleins) mesurées durant la

période comprise entre les instants  $t_3$  et  $t_5$ . Par conséquent, la force de frottement résulte à nouveau du comportement visqueux non-Newtonien du lubrifiant sous pression subissant un taux de cisaillement variable dépendant de la distribution spatiale de l'épaisseur du film au sein du contact.

#### 5.3.4. Vers le roulement pur : $t_5$ - $t_6$

La Figure 83 présente l'évolution de l'épaisseur du film d'huile mesurée en fonction de la vitesse d'entraînement entre  $t_5$  et  $t_6$  : l'épaisseur centrale de film augmente avec la vitesse d'entraînement.  $t_5$  correspond au remplissage complet du contact associé à l'augmentation de la vitesse d'entraînement, l'épaisseur du contact homogène et proche de 16 nm.  $t_6$  correspond au début d'une nouvelle phase de roulement pur ( $U_E = 50$  mm/s) et l'épaisseur de film d'huile est homogène et vaut environ 80 nm.



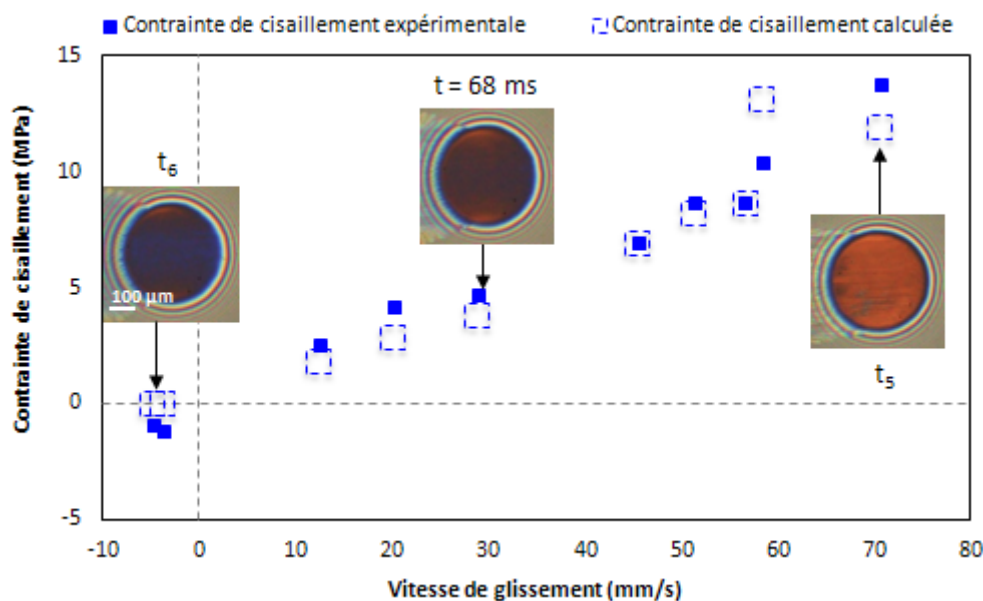
*Figure 83 : Évolution de l'épaisseur centrale de film lubrifiant en fonction de la vitesse d'entraînement entre  $t_5$  et  $t_6$  pour l'huile vieillie, dans un contact Bille Acier/Disque Silice pendant une partie de la période transitoire entre le glissement pur et le roulement pur. L'épaisseur de film augmente avec la vitesse d'entraînement. Elle vaut 16 nm en  $t_5$  et 80 nm en  $t_6$*

L'évolution de l'épaisseur instantanée (Figure 83) est utilisée pour calculer la vitesse de déformation puis la contrainte tangentielle associée à l'écoulement visqueux du lubrifiant sous pression, supposé suivre la loi de Cross issue de l'interprétation des courbes de traction et de Stribeck, en termes de rhéogrammes (voir chapitre 3) :

$$\tau(t) = \eta_{\text{Cross}}(t) * \frac{U_S(t)}{h(t)} \quad (39)$$

avec  $\tau$  la contrainte de cisaillement visqueuse [Pa], et  $\eta_{\text{Cross}}$  la viscosité sous pression issue des courbes de Stribeck et de traction en régime stationnaire [Pa.s].

L'évolution de la contrainte ainsi calculée est tracée en fonction de la vitesse de glissement et comparée à la contrainte de cisaillement interfaciale déduite de la mesure de la force de frottement dans la Figure 84.



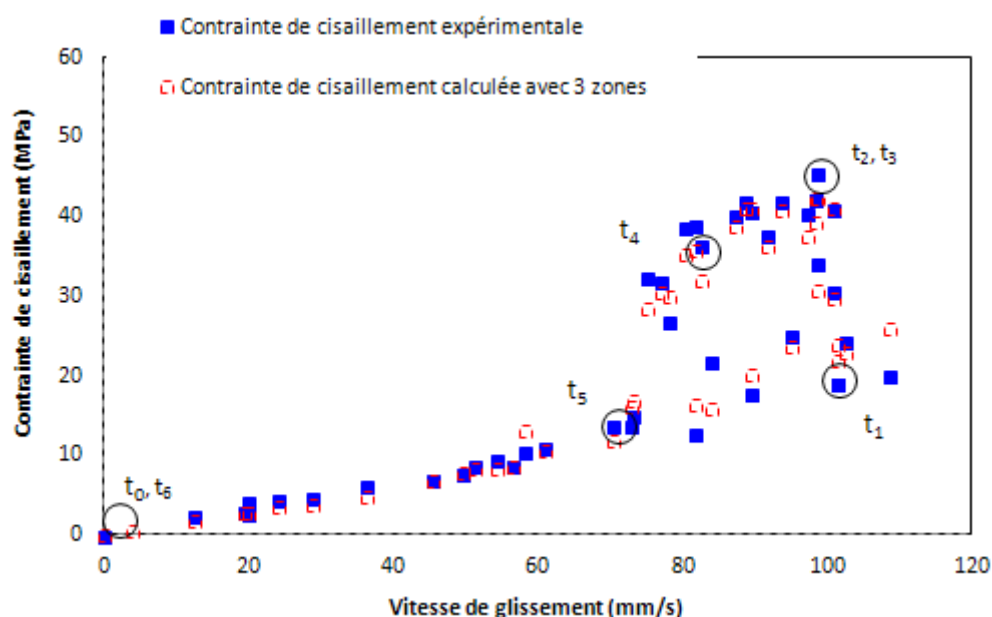
*Figure 84 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de glissement entre  $t_5$  et  $t_6$  pour l'huile vieillie, pour le couple Bille Acier/Disque Silice. La contrainte de cisaillement calculée (carrés vides) modélise parfaitement la contrainte de cisaillement expérimentale (carrés pleins) : le frottement dépend directement de la rhéologie du lubrifiant sous pression s'écoulant dans le contact*

La coïncidence des contraintes de cisaillement instantanées mesurées et calculées, en considérant la viscosité du lubrifiant régie par une loi de Cross, montre que l'hypothèse d'un frottement visqueux semble valide, y compris durant ces phases transitoires.

### 5.3.5. Conclusions

Les contraintes de cisaillement mesurées et calculées sont représentées sur la Figure 85 en fonction de la vitesse de glissement, pour l'ensemble du cycle accélération – glissement pur – décélération. On constate que la modélisation proposée dans ce chapitre est en parfait accord avec les valeurs expérimentales dans toutes les phases du cycle de vitesse intégralement reconstitué. Ceci montre que la force de frottement résulte d'une contribution visqueuse, et du cisaillement d'une couche limite, indépendante de la vitesse de glissement. Cette dernière contribution est due au cisaillement de couches adsorbées sur les surfaces, dont l'épaisseur est de l'ordre de 3 à 4 nm. Leurs propriétés dépendent à la fois de la formulation du lubrifiant et de la nature des surfaces en contact. La contribution visqueuse est due à l'écoulement du lubrifiant sous pression soumis à une vitesse de déformation directement liée à l'épaisseur locale du film et dont la viscosité suit une loi de Cross. Celle-ci est issue des courbes de Stribeck et de traction en régime stationnaire présentée au chapitre 3. L'analyse du régime transitoire montre que le lubrifiant est donc sensible à la variation locale et instantanée de la distribution spatiale des taux de cisaillement dans le contact. Ainsi, l'épaisseur mesurée à l'aide des interférogrammes de contact permet de modéliser finement les phénomènes tribologiques

transitoires dans un contact subissant une pression modérée. Enfin, cette analyse permet de confirmer l'hypothèse faite au chapitre précédent, selon laquelle les changements de couleur observés dans les interférogrammes représentent une variation de l'épaisseur du film lubrifiant et non une variation de l'indice de réfraction liée à la concentration locale des molécules ou des particules dans le contact.



*Figure 85 : Évolution de la contrainte de cisaillement expérimentale (carrés bleus plein) et calculée (carrés rouges vides) en fonction de la vitesse de glissement sur l'ensemble cycle de frottement (phase d'accélération - glissement pur - phase de décélération jusqu'au roulement pur) pour l'huile vieillie dans un contact Bille Acier/Disque Silice*

#### 5.4. Effet de la vitesse de glissement sur la réponse transitoire

Il est possible de tracer le même genre de cycle que celui porté sur la Figure 72 dans la gamme étudiée des vitesses de glissement pur respectivement égales à 10, 20 et 100 mm/s. Pour l'ensemble de ces expériences, l'évolution de la force tangentielle en fonction du temps permet de définir précisément les différentes phases et temps caractéristiques de la réponse tribologique du lubrifiant confiné dans le contact, lors d'un cycle complet accélération - glissement pur - décélération.

L'observation *in situ* du contact lubrifié montre que les mécanismes qui régissent le comportement tribologique du film interfacial en glissement pur et en régime transitoire restent les mêmes et sont indépendants de la vitesse de glissement maximale. La contrainte de cisaillement,  $\tau_{\text{Mince}}$ , reste égale à  $35 \text{ MPa} \pm 5 \text{ MPa}$ , indépendamment de la vitesse de glissement pour le couple Bille Acier/Disque Silice et pour le lubrifiant vieilli. Cela renforce l'hypothèse qu'elle résulte du cisaillement d'un film limite formé par des couches adsorbées de surface sous pression. L'augmentation de la contrainte de cisaillement,  $\tau_{\text{Épais}}$ , avec la vitesse de glissement maximale imposée lors de la sollicitation, confirme son origine visqueuse (9 MPa pour  $U_s = 10 \text{ mm/s}$ , 11 MPa pour  $U_s = 20 \text{ mm/s}$  et 19 MPa pour  $U_s = 100 \text{ mm/s}$ ). La comparaison des mesures expérimentales aux valeurs calculées (cf. Figure 86) montre que la contrainte de cisaillement  $\tau_{\text{Épais}}$ , est due à l'écoulement d'un fluide visqueux sous pression rhéofluidifiant obéissant à une loi de Cross.



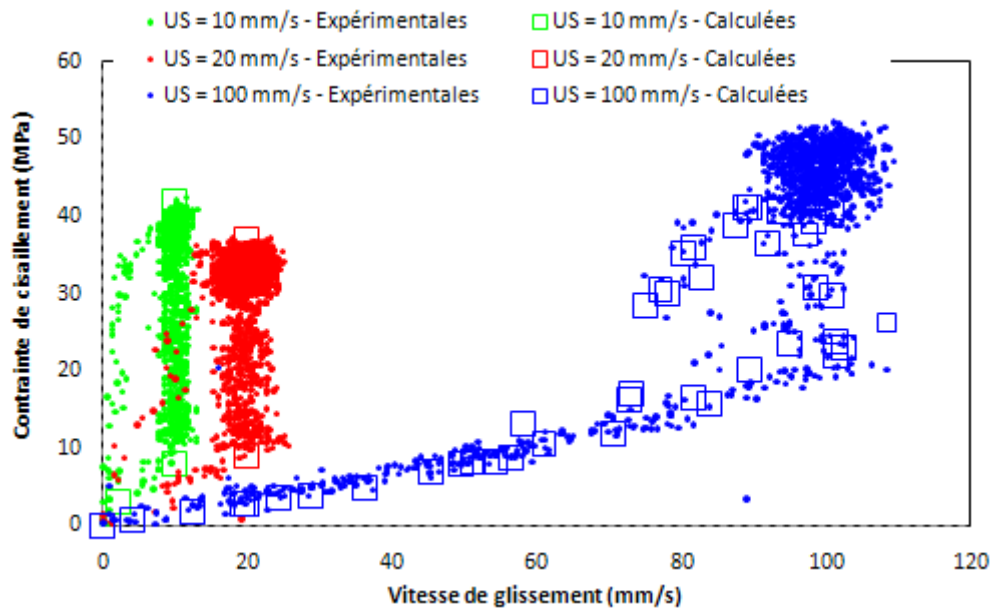


Figure 86 : Contraintes de cisaillement en fonction de la vitesse de glissement pour le couple Bille Acier/Disque Silice et pour le lubrifiant vieilli. La contrainte de cisaillement  $\tau_{\text{Épais}}$  (contrainte en début de glissement pur) dépend de la vitesse de glissement. En revanche, la contrainte de cisaillement  $\tau_{\text{Mince}}$  (contrainte en fin de glissement pur) est relativement constante autour de  $35 \text{ MPa} \pm 5 \text{ MPa}$  et ne dépend pas de la vitesse de glissement. Les contraintes calculées sont également portées sur la figure

La Figure 87 présente la contrainte de cisaillement (adimensionnée par  $\tau_{\text{Mince}}$ ) en fonction de la vitesse de glissement (adimensionnée par  $U_{\text{Smax}}$ ) pour l'ensemble des vitesses étudiées.

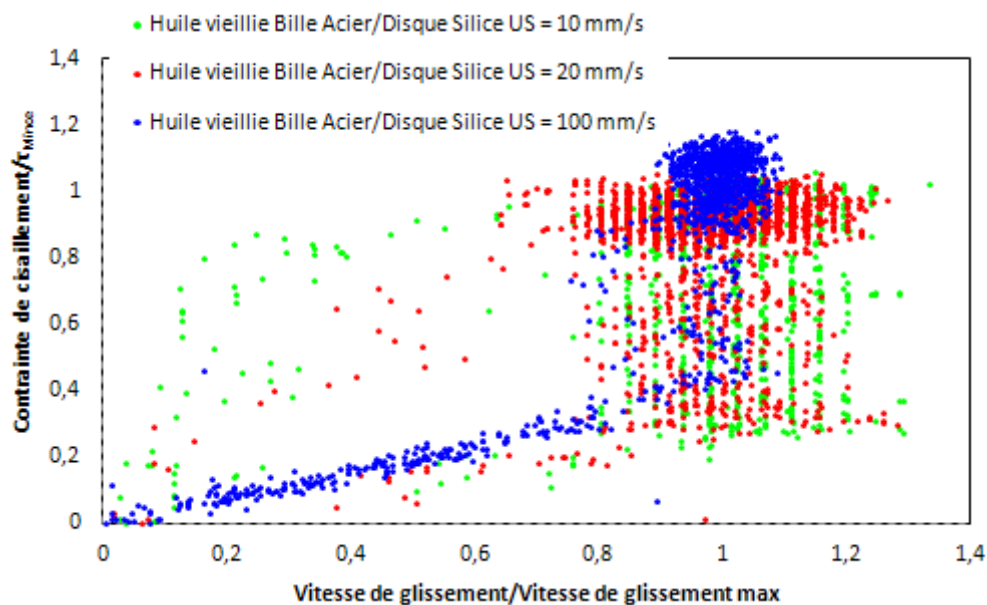


Figure 87 : Évolution de la contrainte de cisaillement adimensionnée par la contrainte  $\tau_{\text{Mince}}$  en fonction de la vitesse de glissement, elle aussi adimensionnée par sa valeur maximale lors d'un cycle accélération - glissement pur - décélération, et ce pour l'ensemble des vitesses étudiées ( $U_s = 10, 20$  et  $100 \text{ mm/s}$ ). Dans tous les cas, il s'agit d'un contact Bille Acier/Disque Silice lubrifié par l'huile vieilli. L'hystérésis observée dépend de la vitesse de glissement maximale,  $U_{\text{Smax}}$ , et signe le processus de vidage et de remplissage du contact



Quelle que soit la cinétique, les mécanismes observés dans les régimes transitoires et en glissement pur restent les mêmes. L'ensemble des cycles représentés sur la Figure 87 sont situés à l'intérieur d'une même enveloppe. Les courbes se rejoignent sur les périodes  $[t_0, t_1]$ ,  $[t_1, t_3]$ ,  $[t_5, t_6]$ , ce qui confirme le modèle de frottement précédemment validé à 100 mm/s avec les trois zones. En revanche sur la période  $[t_3, t_5]$ , montre une hystérésis qui dépend de la vitesse de glissement maximale,  $U_{Smax}$ . Cette hystérésis, qui varie avec la vitesse de glissement, est liée au cycle de vidage et de remplissage du contact.

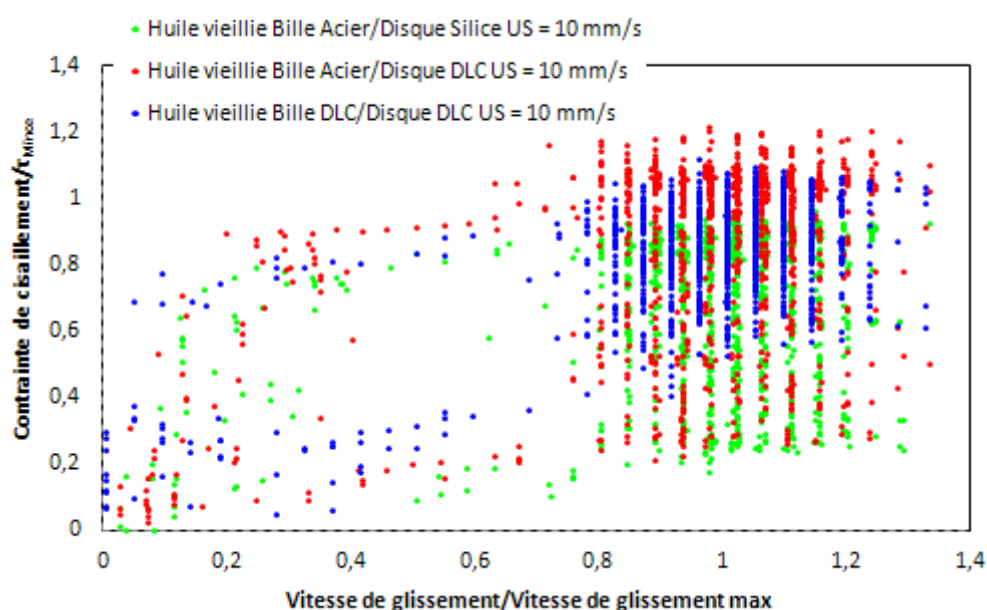
### 5.5. Effet de la nature de la surface sur la réponse transitoire

La même démarche utilisée précédemment pour montrer l'effet de vitesse peut être appliquée de nouveau pour analyser l'effet de la nature physico-chimique de la surface sur la réponse en frottement transitoire lors d'un cycle accélération – glissement pur – décélération. Dans cette partie, le comportement tribologique du contact lubrifié est étudié pour les couples de surface suivants : Bille Acier/Disque Silice, Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC. Une cinématique trapézoïdale, similaire à celle présentée dans les parties précédentes, comprenant une phase de glissement pur de 10 mm/s a été choisie. Les expériences ont été réalisées avec le lubrifiant vieilli à température ambiante dans des conditions de chargement rigoureusement identiques aux expériences précédentes.

Grâce à la mesure de la force tangentielle lors d'un cycle complet couplée à l'observation *in situ* du contact lubrifié, il est possible de tracer la contrainte de cisaillement (adimensionnée par  $\tau_{Mince}$ ) en fonction de la vitesse de glissement (adimensionnée par  $U_{Smax}$ ) pour l'ensemble des surfaces étudiées : Bille Acier/Disque Silice, Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC (voir Figure 88). Les cycles ainsi obtenus sont pratiquement identiques et superposables quelles que soient les surfaces en contact. Ceci indique que les mécanismes régissant le comportement tribologique du film interfacial en glissement pur et en régime transitoire restent les mêmes que ceux décrits précédemment. En particulier, cette représentation en valeurs adimensionnées montre que la connaissance de la contrainte de cisaillement  $\tau_{Mince}$  et de la distribution d'épaisseur locale qui dépend de la vitesse de glissement maximale détermine le niveau de frottement et la puissance dissipée dans un cycle. Les courbes de la Figure 88 ne permettent donc pas de distinguer l'effet de la nature de la surface sur la réponse tribologique du contact lubrifié dans ces régimes transitoires. C'est pourquoi, nous nous intéressons directement aux valeurs des contraintes de cisaillement,  $\tau_{Épais}$  et  $\tau_{Mince}$ , en fonction du couple de surfaces utilisé (Table 16). La contrainte,  $\tau_{Épais}$ , qui est due à l'écoulement visqueux du lubrifiant sous pression est indépendante de la nature des surfaces, les vitesses étant ici toutes identiques. La contrainte,  $\tau_{Mince}$ , dépend, quant à elle, de la nature des surfaces en contact. Ceci confirme l'hypothèse déjà faite dans les paragraphes précédents que cette contrainte reflète la contribution au frottement du cisaillement de couches limites dont l'adsorption est directement reliée aux interactions particules ou molécules/surfaces.

Surfaces	$\tau_{\text{Épais}}$ (MPa)	$\tau_{\text{Mince}}$ (MPa)
Bille Acier + Disque Silice	10	44
Bille Acier + Disque DLC	13	46
Bille DLC + Disque DLC	13	22

*Table 16 : Contraintes de cisaillement  $\tau_{\text{Épais}}$  (contrainte en début de la période de glissement pur) et  $\tau_{\text{Mince}}$  (contrainte à la fin de la période de glissement pur) en fonction de la nature des surfaces. La contrainte de cisaillement  $\tau_{\text{Épais}}$  est indépendante de la nature des surfaces et vaut en moyenne 12 MPa. En revanche, la contrainte de cisaillement  $\tau_{\text{Mince}}$  varie selon la nature des surfaces*

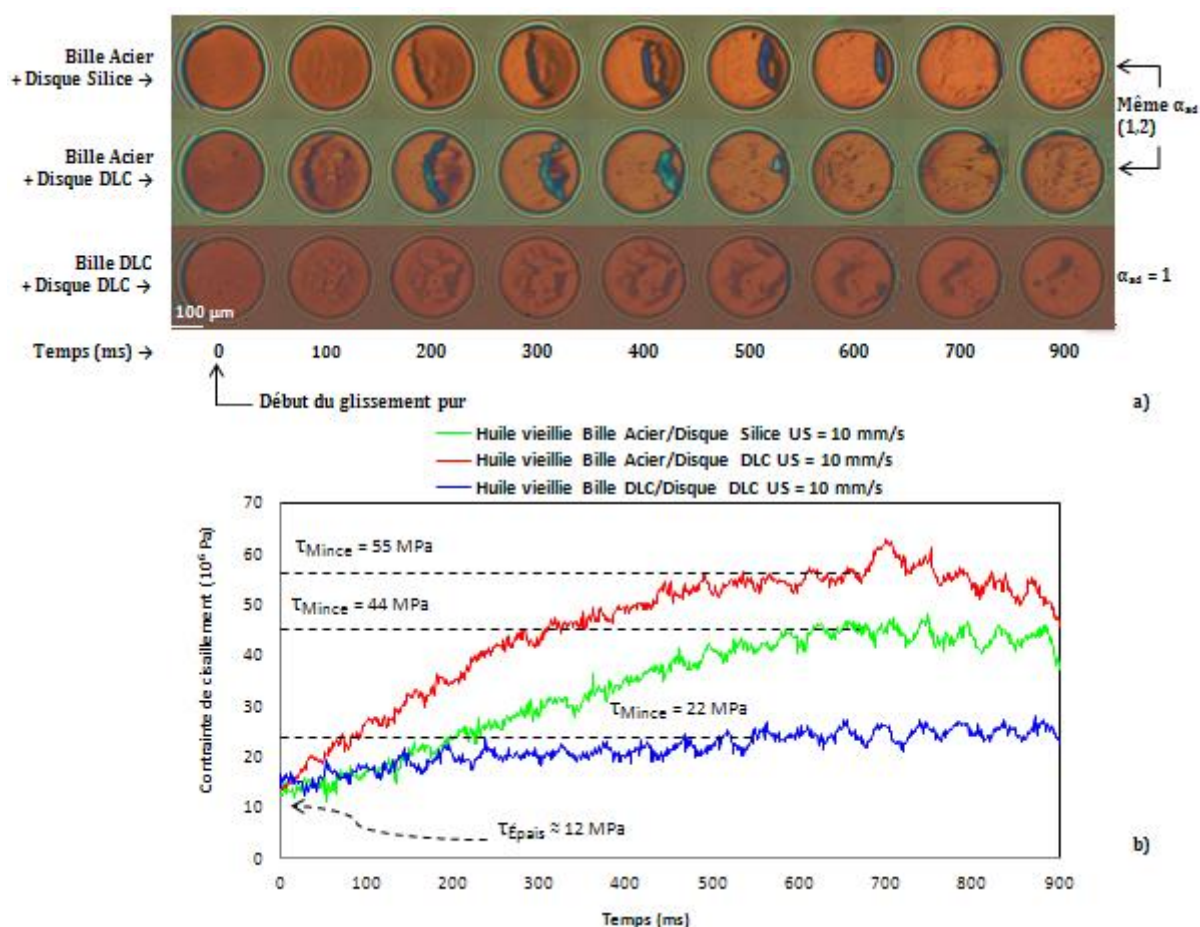


*Figure 88 : Évolution de la contrainte de cisaillement adimensionnée par la contrainte  $\tau_{\text{Mince}}$  en fonction de la vitesse de glissement, elle aussi adimensionnée par sa valeur maximale lors d'un cycle accélération - glissement pur - décélération, et ce pour l'ensemble des couples de surfaces étudiées (Bille Acier/Disque Silice, Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC). Dans tous les cas, il s'agit d'un contact lubrifié par l'huile vieille soumis à une vitesse de glissement maximale de 10 mm/s*

Cette partie du chapitre focalise sur l'unique partie du cycle de la Figure 88 qui varie en fonction des surfaces : la phase de glissement pur. Elle décrit comment les mécanismes d'agrégation sont affectés par la nature des surfaces en contact tout en gardant les autres paramètres constants (cinématique, lubrifiant, pression moyenne de contact et température).

La Figure 89a) présente les interférogrammes de contact obtenus pour ces trois couples de surface au cours d'une phase de glissement pur, pour  $U_s = 10$  mm/s. La première ligne des interférogrammes montre le contact de référence (Bille Acier/Disque Silice) déjà décrit au chapitre précédent. Un agrégat se forme sur le côté gauche du contact lubrifié puis se déplace vers la droite en suivant le mouvement du disque. Dans la seconde série d'interférogrammes, le

disque en Silice est remplacé par un disque de DLC et la nature de la surface de la bille reste inchangée (acier). Avec ce couple de surfaces, un agrégat se forme de manière identique à celle observée dans le contact entre la bille en acier et le disque en silice. Dans la troisième série d'interférogrammes, on remarque que le processus d'agrégation est complètement différent au sein du contact entre la bille en DLC et le disque recouvert de DLC. En effet, aucun agrégat de grandes dimensions ne se forme dans le contact, contrairement aux contacts impliquant une surface en acier. On observe un ensemble de petits agrégats répartis sur la toute la surface de contact et dont la taille ne varie pas au cours du glissement. Ils restent pratiquement immobiles et ne sont pas évacués du contact à l'issue de la phase de glissement pur, contrairement aux agrégats formés dans les contacts Bille Acier/Disque Silice et Bille Acier/Disque DLC.



**Figure 89 : a) Interférogrammes instantanés du contact montrant le processus d'agrégation en fonction du temps au cours d'une phase de glissement pur ( $U_s = 10 \text{ mm/s}$ ) pour plusieurs surfaces et pour un même lubrifiant vieilli. b) Évolution de la contrainte de cisaillement respective en fonction du temps dans la phase de glissement pur. Le diamètre du contact Bille Acier/Disque Silice est de  $250 \text{ µm}$ . La bille se déplace de la droite vers la gauche alors que le disque est mû dans la direction opposée. La nature des surfaces joue un rôle significatif sur les mécanismes d'agrégation. En particulier, aucun agrégat de grande dimension ne se forme dans contact DLC/DLC. La valeur  $\alpha_{ad}$ , le paramètre relatif à l'affinité de l'agrégat avec les surfaces, est aussi indiquée. Celui-ci vaut 1 pour le contact DLC/DLC et 1,2 pour les contacts Acier/Silice et Acier/DLC**

L'affinité relative de l'agrégat vis-à-vis des surfaces est également indiquée sur la Figure 89a). Pour le contact Bille Acier/Disque Silice comme pour le contact Bille Acier/Disque DLC, le paramètre  $\alpha_{ad}$ , défini au chapitre 4 vaut 1,2. Ceci signifie que l'agrégat se déplace toujours dans la direction du mouvement du disque et qu'il présente plus d'affinité avec la surface en silice ou en DLC qu'avec la surface en acier. En revanche, dans le contact Bille DLC/Disque DLC, les surfaces étant identiques, les agrégats sont statiques et le paramètre  $\alpha_{ad}$  égal logiquement 1. Ces résultats sont confirmés sur la Figure 89b) qui présente l'évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du temps dans la phase de glissement pur. Le couple Bille DLC/Disque DLC (courbe bleu) présente la contrainte de cisaillement la plus faible et la plus stable au cours de la phase de glissement pur.

Ces expériences montrent que les mécanismes de formation de l'agrégat et leur déplacement dépendent de la nature des surfaces en contact, notamment des interactions entre les molécules ou les particules et ces surfaces. Des expériences menées sur des DLC polarisés ont montré des cinétiques d'agrégation différentes, suggérant l'existence d'éventuels phénomènes électrostatiques dans ces interactions. Il reste néanmoins à confirmer cette hypothèse, par des expériences de frottement sous champ électrique, actuellement en cours de développement.

## 5.6. Conclusions

Les phénomènes transitoires ont été analysés en couplant les mesures de la force tangentielle et l'observation simultanée du contact en imagerie rapide, afin d'une part d'identifier les temps caractéristiques des processus physiques mis en jeu et d'autre part d'accéder à la distribution d'épaisseur au sein du contact. Cette méthodologie permet, en outre, de mesurer les valeurs instantanées des contraintes de cisaillement moyennées sur le contact et des vitesses de déformations locales. C'est ainsi que nous avons pu montrer que la force de frottement, sur l'ensemble du cycle transitoire, accélération - glissement pur - décélération, résultait d'une contribution "liquide" visqueuse et d'une contribution "solide" indépendante de la vitesse de glissement, due au cisaillement d'un film limite. La contrainte associée à ce dernier est due au cisaillement des couches adsorbées de surface d'épaisseur 3-4 nm et dépend à la fois du lubrifiant et de la nature des surfaces en contact. La composante visqueuse est due à l'écoulement du lubrifiant sous pression qui subit, dans les zones du contact où il est présent, une vitesse variable au cours du temps. Il se comporte comme un liquide rhéofluidifiant dont la viscosité obéit à une loi de Cross. Celle-ci est identifiée à partir des courbes de Stribeck et de traction mesurées en régime stationnaire (voir chapitre 3). Cette approche physique, souligne le rôle de la distribution spatiale du taux de cisaillement au sein du contact et de la réponse rhéologique associée.

Les effets de la vitesse sur la réponse tribologique transitoire ont ensuite été analysés pour toutes les cinématiques étudiées ( $U_s = 10, 20$  et  $100$  mm/s), pour un contact entre une bille en acier et un disque en silice. Ces analyses montrent que :

- La contrainte de cisaillement,  $\tau_{Mince}$ , est indépendante de la vitesse de glissement : elle est pilotée par le cisaillement d'une couche limite de surface,

- La contrainte de cisaillement,  $\tau_{\text{Épais}}$ , est dépendante de la vitesse de glissement : elle est due à l'écoulement visqueux du lubrifiant dont le comportement tribologique est déterminé à partir des rhéogrammes issues des courbes de Stribeck et de traction (chapitre 3).

Le comportement tribologique du contact lubrifié a également été étudié pour les couples de surface suivants : Bille Acier/Disque Silice, Bille Acier/Disque DLC et Bille DLC/Disque DLC, dans un cycle accélération - glissement pur - décélération avec une vitesse de glissement maximale de 10 mm/s. Ces analyses montrent que :

- La contrainte de cisaillement,  $\tau_{\text{Mince}}$ , dépend de la nature des surfaces en contact ce qui semble confirmer l'hypothèse de la contribution d'une couche limite adsorbée au frottement.
- La contrainte de cisaillement,  $\tau_{\text{Épais}}$ , due à l'écoulement visqueux du lubrifiant sous pression est indépendante de la nature des surfaces, puisque le cycle de vitesse est le même pour toutes les expériences réalisées avec chacune des surfaces. Cela signifie implicitement que la nature des surfaces ne modifie pas les conditions aux limites, d'adhérence à la paroi.

Ainsi, les mécanismes d'agrégation, qui se produisent lors des phases de glissement pur, dépendent de la nature des surfaces en contact. En particulier, nous montrons que l'agrégation est contrôlée par le couplage entre les interactions lubrifiant/surface et la cinématique du contact. Dans un contact DLC/DLC, les agrégats restent petits, stables et bien dispersés. Ce processus particulier d'agrégation conduit à un frottement faible. Ces résultats soulèvent la question d'un probable effet de la polarité des surfaces qu'il conviendra d'étudier par la suite afin d'améliorer la compréhension des phénomènes physiques qui régissent le comportement tribologique du film interfacial en régime transitoire et en glissement pur. De plus, l'étude de l'effet de la polarité des surfaces peut permettre de contrôler les phénomènes d'agrégation dans un contact lubrifié et donc d'optimiser les pertes d'énergie par frottement mécanique dans les contacts DLC/DLC, notamment dans la zone SPC.

Enfin, au-delà de l'identification de la loi rhéologique du lubrifiant sous pression et cisaillement, il est possible de relier les comportements tribologiques des couples lubrifiants/surfaces sous les sollicitations transitoires analysées à la courbe de Stribeck classiquement utilisée pour discriminer les régimes de lubrification (voir Figure 90). Ainsi, les différentes périodes des cycles étudiés peuvent se positionner de la façon suivante :

- Entre  $t_2$  et  $t_3$  (phase de glissement pur après évacuation des agrégats hors du contact), le contact est lubrifié par un film limite ayant une épaisseur d'environ 3-4 nm avec une contrainte de cisaillement égale à  $\tau_{\text{Mince}}$ . Cette configuration correspond au régime limite de la courbe de Stribeck où les effets de surface sont prépondérants dans le comportement tribologique.
- Entre  $t_1$  et  $t_2$  (période du glissement pur où les agrégats se forment puis quittent progressivement le contact) et entre  $t_3$  et  $t_5$  (phase de remplissage du contact en lubrifiant), le contact est composé de zones complètement dépourvues d'agrégats visibles (épaisseur, 3-4 nm), de zones avec des agrégats d'épaisseur variable au cours du temps de glissement (entre 14 et 130 nm) et de zones lubrifiées par un film d'épaisseur constante (entre 12 et 14 nm). Cette configuration s'apparente au régime mixte de la

courbe de Stribeck où le cisaillement des films limites et le cisaillement visqueux correspondant à l'écoulement du lubrifiant en film complet contribuent simultanément et indépendamment au comportement tribologique du contact.

- Entre  $t_0$  et  $t_1$  (période où la vitesse d'entraînement diminue jusqu'à s'annuler) et entre  $t_5$  et  $t_6$  (période où la vitesse d'entraînement augmente jusqu'à sa valeur maximale) le contact est lubrifié par un film d'huile complet dont l'épaisseur dépend de l'évolution temporelle de la vitesse d'entraînement. Cette configuration s'apparente au régime EHD de la courbe de Stribeck où le comportement tribologique est contrôlé par la rhéologie (ici non-Newtonienne) du lubrifiant.

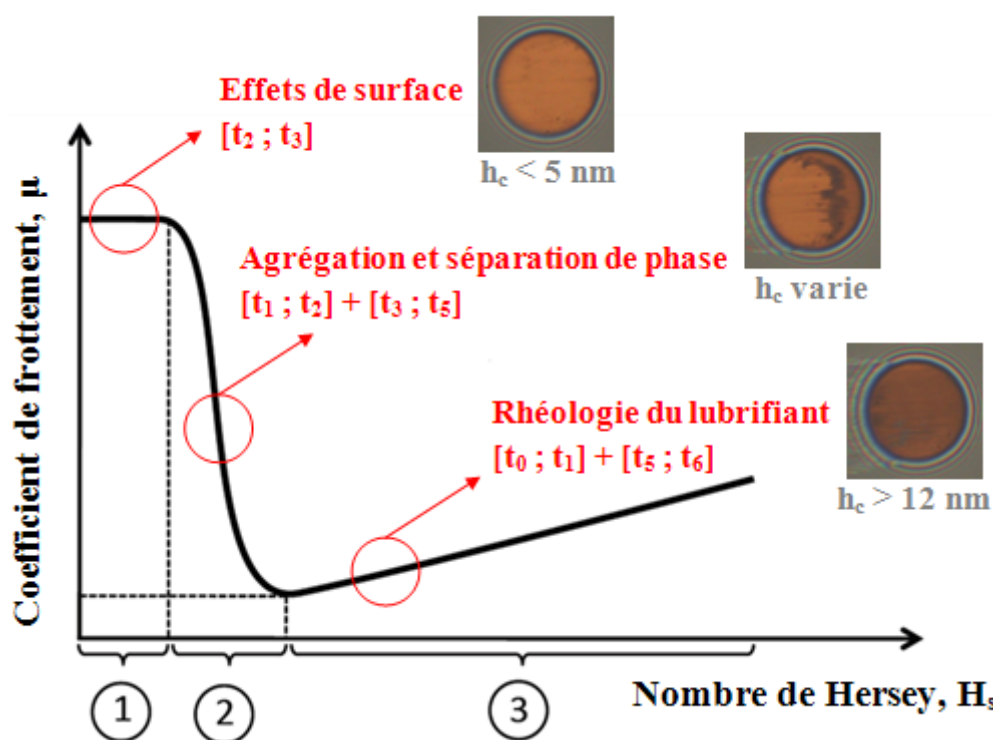


Figure 90 : Schéma synthétique présentant le lien entre la courbe de Stribeck en régime stationnaire et la réponse tribologique du lubrifiant en régime transitoire et en glissement pur

## Conclusion générale

Le moteur à explosion, utilisé dans l'automobile est en perpétuelle évolution pour des raisons économiques et écologiques. Afin de diminuer les consommations de carburant des véhicules Diesel et ainsi diminuer les émissions polluantes tout en augmentant la durabilité et la robustesse des moteurs, l'un des axes étudiés est la réduction des pertes mécaniques par frottement du moteur qui constituent 15 à 20 % de la consommation totale d'énergie du moteur Diesel. 40 % de ces frottements proviennent des contacts Segments-Piston-Chemise (SPC). De ce fait, la compréhension des mécanismes de lubrification de ces contacts, en tenant compte du vieillissement des lubrifiants, constitue un enjeu à la fois technologique et économique.

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre général de la lubrification des moteurs Diesel en présence de suies et s'intéresse plus particulièrement au contact SPC. Une solution de rupture est proposée en revêtant les segments de couches minces Diamond-Like Carbon (DLC). La cinématique sinusoïdale du piston impose au contact SPC certains points de fonctionnement particuliers où la vitesse d'entraînement du lubrifiant est très faible et la vitesse de glissement est très forte. De ce fait, les épaisseurs du film d'huile séparant les surfaces antagonistes évoluent également de façon importante. Le contact SPC passe ainsi par trois régimes de lubrification distincts durant son cycle : limite, mixte et élastohydrodynamique et se caractérise par une grande variabilité de ses conditions de fonctionnement. Dans ce contact, les lubrifiants sont soumis à des conditions de sollicitation sévères. La complexité des phénomènes mis en jeu, couplant mécanique et physico-chimie, explique la mauvaise connaissance des mécanismes de réponse des lubrifiants et leurs comportements. L'objectif de cette thèse est double : il consiste d'une part à étudier les mécanismes de lubrification en régime stationnaire et transitoire avec un lubrifiant vieilli en fonctionnement, et d'autre part, à analyser l'impact des surfaces DLC sur ces mécanismes de lubrification en termes de formation de film lubrifiant et de frottement.

Ce travail expérimental se base sur la mesure simultanée des forces de contact avec l'observation directe du film interfacial, pour des cinématiques parfaitement contrôlées, alternant roulement et glissement.

La capacité des lubrifiants, neuf ou vieilli, à former un film lubrifiant, est indépendante des surfaces et elle conduit à l'établissement d'un film homogène, sans agrégation significative visible au sein du contact. Une viscosité effective, caractéristique de l'écoulement du lubrifiant dans la zone du convergent et inférieure à la viscosité dynamique à faible taux de cisaillement, gouverne l'épaisseur de film. L'analyse rhéologique montre que cette viscosité effective résulte plus d'un effet de filtration du convergent que d'un comportement rhéofluidifiant du lubrifiant en entrée de contact.

L'analyse de la réponse tribologique de l'interface lubrifiée en film complet, aussi bien en conditions stationnaires que transitoires, au travers de courbes de traction et de courbes de Stribeck mais également lors des phases d'accélération et de décélération des solides, montre que le frottement mesuré, indépendant des surfaces, résulte de l'écoulement visqueux d'un fluide de Cross sous pression (Figure 91). La viscosité du lubrifiant dans la zone de haute pression à faible taux de cisaillement correspond à la viscosité effective dans le convergent, ce qui confirme l'effet de filtration.

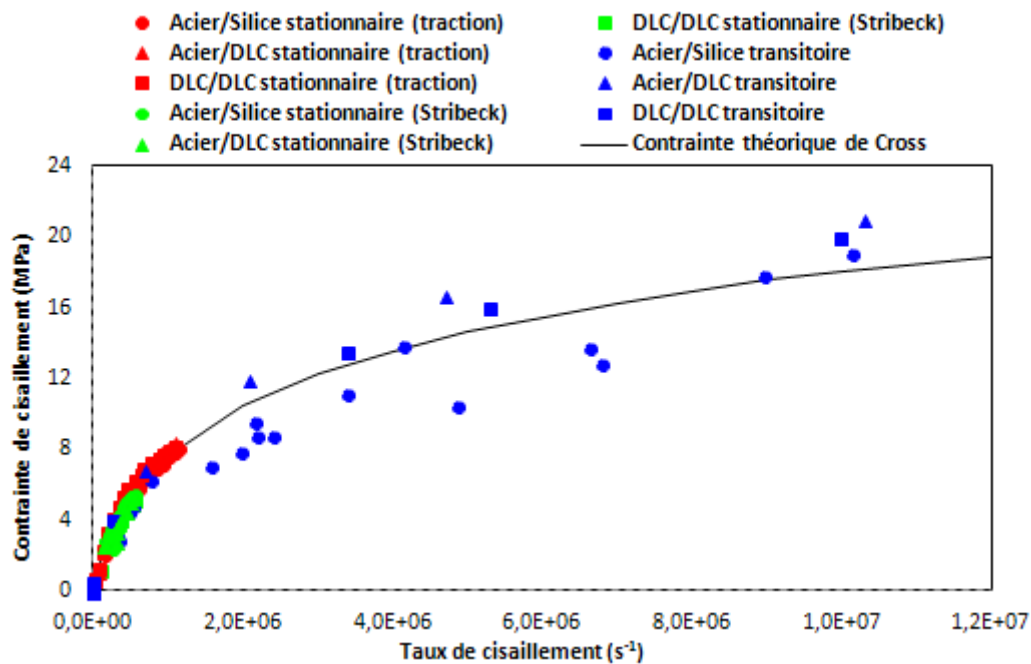


Figure 91 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement, mesurée pour l'huile vieillie en film complet en régime stationnaire et transitoire. La réponse en frottement se modélise par l'écoulement visqueux d'un fluide de Cross sous pression (en ligne continue)

Une modélisation de la totalité de la courbe de Stribeck à l'aide du modèle modifié d'Emmens-Schipper a été proposée (Figure 92). Le frottement limite, quant à lui, est piloté par la nature des surfaces et les couches limites adsorbées.

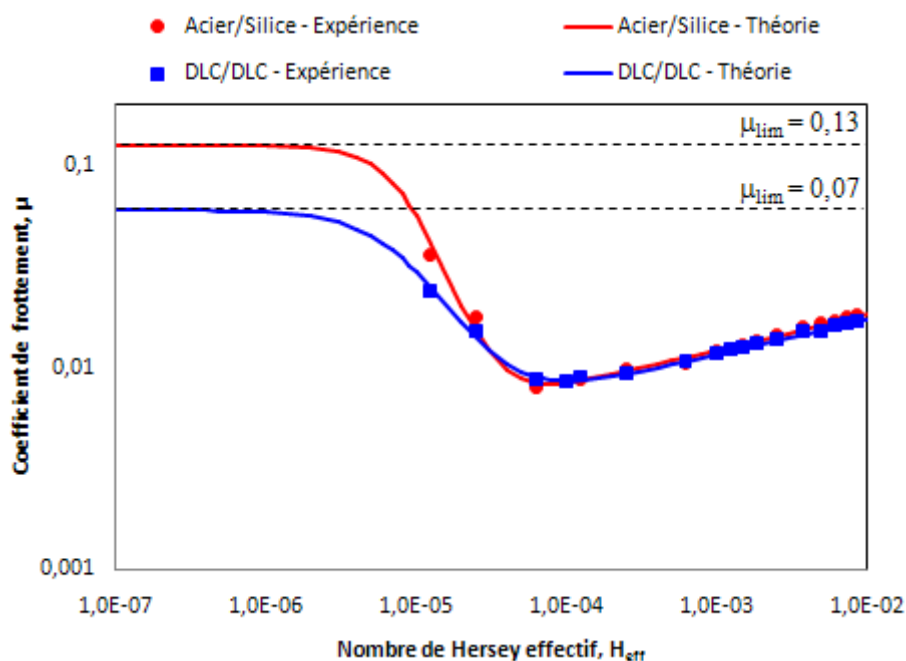


Figure 92 : Évolution du coefficient de frottement en fonction du nombre de Hersey ( $H = \eta_{\text{eff}} \cdot U_E / (P \cdot \sigma_{\text{RMS}})$ ) mesurée pour l'huile vieillie en régime stationnaire. La modélisation théorique de la courbe de Stribeck est également portée.  $\mu_{\text{lim}}$  est indiqué en trait discontinu. Cette valeur est issue des expériences en régime transitoire



La déstructuration du lubrifiant et la formation d'agrégats se produisent lors des cycles décélération - glissement pur - accélération. De fortes hétérogénéités en épaisseur sont corrélées à des fluctuations importantes du frottement. Ces phénomènes traduisent le rôle fondamental de la distribution spatiale du taux de cisaillement au sein du contact et sa prise en compte conduit à la modélisation théorique du frottement lors d'un cycle complet.

Les revêtements DLC, développés dans le cadre de ce travail de thèse, ont permis de diminuer de manière drastique le frottement limite, en régime stationnaire et transitoire. De plus, les mécanismes d'agrégation, qui se produisent lors des phases de glissement pur, sont contrôlés par le couplage entre les interactions lubrifiant/surface et la cinématique du contact : dans un contact DLC/DLC, les agrégats restent petits, stables et bien dispersés.

Ces mécanismes d'agrégation sont gouvernés par le triptyque lubrifiant, surface et cinématique de contact. Ceci nous conduit à nous interroger sur le rôle de la polarité des surfaces. Si les premières expériences ne se sont pas révélées pour le moment concluantes, les essais de mise sous champ électrique d'un contact lubrifié et la mesure d'impédance de cette interface confinée méritent néanmoins d'être poursuivis. Cette approche peut permettre d'améliorer la compréhension des phénomènes physiques qui régissent les mécanismes de la lubrification colloïdale en régime stationnaire et transitoire. De plus, le contrôle des phénomènes d'agrégation au sein d'un contact lubrifié, clairement corrélés à la dissipation, conduit à l'optimisation des pertes d'énergies par frottement mécanique dans les contacts DLC/DLC, notamment dans la zone SPC.

## Bibliographie

1. Mandukisa, <http://mandukisa.skyrock.com/2067795016-EN-LIGNE-EN-V-A-PLAT-Moteur-Diesel-quatre-temps.html>.
2. Woydtn, : *Application des données tribologiques des matériaux techniques de l'ingénieur*. BM7006, Génie Mécanique (2004).
3. Stachowiak, G., Batchelor, A.: *Engineering tribology*. In *Engineering Tribology*. Butterworth-Heinemann, third edition (2006).
4. Shengua, L., Jijun, L., Longbao, Z., Rong, W.: *An experimental investigation of the oil film lubricating piston rings*. SAE 961912 (1996).
5. Molimard, J.: *Étude expérimentale du régime de lubrification en film mince - application aux fluides de laminage*. PhD thesis, INSA de Lyon (1999).
6. Barus, C.: *Isothermals, isopiestic and isometrics relative to viscosity*. *Am. J. of Science* 45, 87-96 (1893).
7. Roelands, C.J.A.: *Correlational aspects of the viscosity-temperature-pressure relationship of lubricating oils*. PhD Thesis, Technical University Delft, Delft, The Netherlands (1966).
8. Fay, H.: *Films Lubrifiants Supramoléculaires Organisés : de la Microstructure aux Propriétés Tribologiques*. PhD thesis, Université de Bordeaux 1(2011).
9. Bou-Chakra, E., Cayer-Barrio, J., Mazuyer, D., Jarnias, F., Bouffet, A.: *A non-Newtonian model based on Ree-Eyring theory and surface effect to predict friction in elastohydrodynamic lubrication*. *Tribol. Int.* 43, 1674-1682 (2010).
10. Chapkov, A.D., Venner, C.H., Lubrecht, A.A.: *Roughness Amplitude Reduction under Non-Newtonian EHD Lubrication Conditions*. *Tribol. Int.* 48, 637-648(2005).
11. Cross, M.M.: *Polymer rheology: Influence of molecular weight and polydispersity*. *J. Appl. Polym. Sci.* 13, 765 (1969).
12. Ben Azouz Ahmed, K.: *Relations entre propriétés rhéologiques et structure microscopique de dispersions de particules d'argile dans des solutions de polymères*. PhD thesis, Université de Strasbourg (2012).
13. Meunier, C.: *Vieillessement des lubrifiants et compréhension des mécanismes de lubrification – Application à la zone Segment-Piston-Chemise*. PhD thesis, École Centrale de Lyon (2008).
14. Johnson, M.D., Korcek, S., Zinbo, M. : *Inhibition of oxidation by ZDTP and ashless antioxidants in the presence of hydroperoxides at 160 °C. Part I*, SAE 831684(1984).
15. Johnson, M.D., Korcek, S.: *Effects of Nox on liquid phase oxidation and inhibition at elevated temperatures*. *Lubrication Science*, 95-116 (1991).
16. Denis, J., Briant, J., Hipeaux, J.C.: *Physico-chimie des lubrifiants*. Publications de l'Institut Française du Pétrole. Éditions Technip (1997).

17. Howard J.B., Kaush W.J.Jr.: Soot Control by Fuel Additives. *Energy Combust. Sci* 6, 263-27 (1980).
18. Van Setten, B.A.A.L., Makkee, M., Moulijn, J.A.: Science and technology of catalytic diesel particulate filters. *Science and Engineering* 43, 489-564 (2001).
19. Azambre, B., Collura, S., Trichard, J.M., Weber, J.V.: Nature and thermal stability of adsorbed intermediates formed during the reaction of diesel soot with nitrogen dioxide. *Surface Science* 253, 2296-2303 (2006).
20. Kawamura, M., Ishiguro, T., Morimoto, H.: Electron microscopic observation of soots in used engine oils. *Lubr. Eng.* 43, 572-575 (1987).
21. Esangbedo, C., Boehman, A.L., Perez, J.M.: Characteristics of diesel engine soot that lead to excessive oil thickening. *Tribology International* 47, 194-203 (2012).
22. Sun, R., Kittelson, D.B., Blackshear, P.L.: Size distribution of Diesel Soot in the lubricating oil. SAE Tech. Paper No. 912344 (1991).
23. Tree, D.R., Svensson, K.I.: Soot processes in compression ignition engines. *Progress in Energy and Combustion Science*, Elsevier (2006).
24. Varenne, E.: Usure de la distribution d'un moteur diesel. PhD thesis, École Centrale de Lyon (1996).
25. Colacicco, Ph., Mazuyer, D.: The role of soot aggregation on the lubrication of diesel engines. *Trib. Trans.* 38, 959-965 (1995).
26. EMAC/EMSE/ENSMP : Les Fondamentaux de la Cristallisation et de la Précipitation. Version 1.7 (en finalisation), 25 août 2011. [http://nte.mines-albi.fr/CristalGemme/co/CristalGemme\\_web.html](http://nte.mines-albi.fr/CristalGemme/co/CristalGemme_web.html).
27. Genin, C. : Optimisation de systèmes colloïdaux en phase aqueuse pour la lubrification en conditions extrêmes : application au tréfilage. PhD thesis, École Centrale de Lyon (2007).
28. Elyson, A.P., Caio, G., Edson, D., Chateauneuf, A.: Nonlinear formulation based on FEM, Mazars damage criterion and Fick's law applied to failure assessment of reinforced concrete structures subjected to chloride ingress and reinforcements corrosion. *Engi.*
29. Russel, W.B., Saville, D.A., Schowalter, W.R.: *Colloidal Dispersions*, Cambridge University Press (1989).
30. Stokes, G.G.: On some cases of fluid motion. *Trans. Camb. Philos. Soc.* 8, 105 (1843).
31. Mazuyer, D.: Cours sur la matière molle dispensé à l'École Centrale de Lyon (2014).
32. Stribeck, R.: Die wesentlichen eigenschaften der gleit - und rollenlager. *VDI Zeitschrift* 46, 1341-1348, 1432-1438 and 1463-1470 (1902).
33. Priest, M., Taylor, C.M.: Automobile engine tribology - approaching the surface. *Wear* 240, 193-203 (2000).
34. Taylor, C.M.: Automobile engine tribology - design considerations for efficiency and durability. *Wear* 221, 1-8 (1998).
35. Cann, P.M.E., Damiens, B., Lubrecht, A.A.: The transition between fully flooded and starved regimes in EHL. *Tribol. Inter.* 37, 859-864 (2004).

36. Tourbin, M.: *Caractérisation et comportement de suspensions concentrées de nanoparticules sous écoulement : Application aux processus d'agrégation et de rupture*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse (2006).
37. Smoluchowski, M.: *Versuch eine metematischen theorie der koagulationskinetik kolloider lösungen*, *Zeitschrift für physikalische Chemie* 92, 129-168 (1917).
38. Chinas-Castillo, F., Spikes, H.A.: *Mechanism of Action of Colloidal Solid Dispersions*. *Journal of Tribology* 125, 552-557 (2003).
39. Chinas-Castillo, F., Spikes, H.A.: *Behaviour of colloidally-dispersed solid particles in very thin film lubricated contacts*. *Journal of Tribology* 125, 719-731 (2000).
40. Chinas-Castillo, F., Spikes, H.A.: *The behavior of diluted sooted oils in lubricated contacts*. *Tribology Letters* 16(2004).
41. Georges, S., Balla, S., Gautam, V., Gautam, M.: *Effect of diesel soot on lubricant oil viscosity*. *Tribology International* 40, 809-818 (2007).
42. Melero, J .F.: [http://fr.wikipedia.org/wiki/Hybridation\\_%28chimie%29](http://fr.wikipedia.org/wiki/Hybridation_%28chimie%29) (2011).
43. Zazula, J.M.: *On Graphite Transformations at High Temperature and Pressure Induced by Absorption of the LHC Beam* (1997).
44. Bundy, F.P.: *Pressure-Temperature Phase Diagram of Elemental Carbons*. *Physica* 156, 169 (1989).
45. Steinback, J., et al.: *A Model for Pulsed Laser Melting of Graphite*. *J. Appl. Phys.* 58, 4374 (1985).
46. McKenzie, D.R.: *Tetrahedral bonding in amorphous carbon*. *Rep. Prog. Phys.* 59, 1611-1664 (1996).
47. Grill, A.: *Diamond-like carbon : state of the art*. *Diamond Relat. Mater.* 8, 428-434 (1999).
48. Jacob, W., Möller, W., *Appl. Phys. Lett.* 63, 1771 (1993).
49. Robertson, J.: *Diamond-like amorphous carbon*. *Mater. Sci. Eng.* 37, 129-281 (2002).
50. Donnet, C., Grill, A.: *Friction control of diamond-like carbon coatings*. *Surf. and Coat. Tech.* 94, 456-462 (1997).
51. Donnet, C., Fontaine, J., Le Mogne, T., Belin, M., Héau, C., Terrat, J. P., Vaux, F., Pont, F.: *Diamond-like carbon-based functionally gradient coatings for space tribology*. *Surf. and Coat. Tech.* 120, 548-554 (1999).
52. Maillat, M., Hintermann, H. E.: *Tribological properties of amorphous diamond-like carbon coatings*. *Surf. and Coat. Tech.* 68, 638-643 (1994).
53. Donnet, C., Le Mogne, T., Ponsonnet, L., Belin, M., Grill, A., Patel, V., and Jahnes, C.: *The respective role of oxygen and water vapor on the tribology of hydrogenated diamond-like carbon coatings*. *Tribol. Lett.* 4, 259-265 (1998).
54. Tiainen, V.M.: *Amorphous carbon as a bio-mechanical coating—mechanical properties and biological applications*. *Diamond Relat. Mater.* 10, 153-160 (2001).

55. Allen, M., Myer, B. and Rushton, N.: *In vitro and in vivo investigations into the biocompatibility of diamond-like carbon (DLC) coatings for orthopedic applications. J. Biomed. Mater. Res.* 58, 319-328 (2001).
56. Chen, J.Y., Wang, L.P., Fu, K.Y., Huang, N., Leng, Y., Leng, Y.X., Yang, P., Wang, J., Wan, G.J., Sun, H., Tian, X.B. and Chu, P.K.: *Blood compatibility and sp<sup>3</sup>/sp<sup>2</sup> contents of diamond-like carbon (DLC) synthesized by plasma immersion ion implantation-de.*
57. Cui, F.Z. and Li, D.J.: *A review of investigations on biocompatibility of diamond-like carbon and carbon nitride films. Surf. Coat. Technol.* 131, 481-487 (2000).
58. Asakawa, R., Nagashima, S., Nakamura, Y., Hasebe, T., Suzuki, T., Hotta, A.: *Combining polymers with diamond-like carbon (DLC) for highly functionalized materials. Surf. and Coat. Tech.* 206, 676-685 (2011).
59. Becker, E.P.: *Trends in tribological materials and engine technology. Tribol. Int.* 37, 569-575 (2004).
60. Bandorf, R., Luthje, H., Henke, C., Wiebe, J., Sick, J., Kuster, R.: *Different carbon based thin films and their microtribological behaviour in MEMS applications. Surf. and Coat. Tech.* 200, 1777-1782 (2005).
61. Grill, A.: *Electrical and optical properties of diamond-like carbon. Thin Solid Films* 355, 189-193 (1999).
62. Staryga, E., Bak, G.W.: *Relation between physical structure and electrical properties of diamond-like carbon thin films. Diamond and Related Materials* 14, 23-24 (2005).
63. Pappas, D.L., Saenger, K.L., Bruley, J., Krakow, W., Cuomo, J.J., Gu, T., Collins, R.W.: *Pulsed laser deposition of diamond-like carbon films. J. Appl. Phys.* 71, 5675-5684 (1992).
64. Chhowalla, M., Robertson, J., Chen, C.W., Silva, S.R.P., Davis, C.A., Amaratunga, G.A.J. and Milne, W.I.: *Influence of ion energy and substrate temperature on the optical and electronic properties of tetrahedral amorphous carbon (ta-C) films. J. Appl. Phy.*
65. Grill, A.: *Tribology of diamond-like carbon and related materials: an updated review. Surface and Coatings Technology* 94-95, 507-513 (1997).
66. Vladimirov, A.B., Trakhtenberg, I.S., Rubshtein, A.P., Plotnikov, S.A., Bakunin, O.M., Korshunov, L.G., Kuzmina, E.V.: *The effect of substrate and DLC morphology on the tribological properties of coating. Diamond and Related Materials* 9, 838-842 (2000).
67. Jiang, J., Arnell, R.D.: *The effect of substrate surface roughness on the wear of DLC coatings. Wear* 239, 1-9 (2000).
68. Liu, E., Ding, Y.F., Li, L., Blanpain, B., Celis, J.P.: *Influence of humidity on the friction of diamond and diamond-like carbon materials. Tribology International* 40, 216-219 (2007).
69. Lory, C.: *Revêtements complexes antifriction pour les composants moteurs automobiles. De la F1 à la grande série. E.D.P. Science*, 227-237 (2011).
70. Hauert, R.: *An overview on the tribology behaviour of diamond like carbon in technical and medical applications. Tribol. Int.* 37, 991-1003 (2004).

71. Tung, S.C., McMillan, M.L.: *Automotive tribology overview of current advances and challenges for the future*. Tribol. Int. 37, 517-536 (2004).
72. Richardt A., Richardt I.: *Évaporation sous vide. Traitements de surfaces en phase vapeur*. Lavoisier, 395 (2002).
73. Donald, M.M.: *Handbook of Physical Vapor Deposition (PVD) Processing (Second Edition)*, Elsevier inc. (2010).
74. Reiche R., Yubero F., Espinos J.P., Gonzales-Elise A.R.: *Structure, microstructure and electronic characterisation of the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> interface by electron spectroscopies*. Surf. Sci. 457, 199-210 (2000).
75. David, R.: *Handbook of Chemistry and Physics*. Press Inc 90, 2804 (2009).
76. Dublanche-Tixier, C: *PVD (Physical Vapor Deposition) - Pulvérisation cathodique* : <http://www.unilim.fr/spcts/PVD-Physical-Vapor-Deposition.html>.
77. Maurin-Perrier, P., Héau, C., Vaux, F., Poirson, J.M.: *Ultra hard TiBN coatings obtained by new plasma enhanced reactive sputter deposition*. Proc. Society of Vacuum Coaters 42nd Annual Tech. Conf. (1999).
78. Maurin-Perrier, P., Héau, C., Poirson, J.M., Metzgar, K.: *Highly flexible coating system for tribological and wear coatings*. Proc. Society of Vacuum Coaters 43rd Annual Tech. Conf. Denver, 305-310 (2000).
79. Billard, A., *Ingénierie des surfaces. Le LERMPS est un laboratoire de l'Université de Technologie de Belfort Montbéliard* : <http://lermps.utbm.fr/index.php?pge=30>.
80. Teo, K.B.K., Ferrari, A.C., Fanchini, G., Rodil, S.E., Yuan, J., Tsai, J.T.H., Laurenti, E., Tagliaferro, A., Robertson, J., Milne, W.I.: *Highest optical gap tetrahedral amorphous carbon*. Diamond Relat. Mater. 11, 1086-1090 (2002).
81. Martínez, E., Andújar, J.L., Polo, M.C., Esteve, J., Robertson, J., Milne, W.I.: *Study of the mechanical properties of tetrahedral amorphous carbon films by nanoindentation and nanowear measurements*. Diamond Relat. Mater. 10, 145-152 (2001).
82. Sheeja, D., Tay, B.K., Shi, X., Lau, S.P., Daniel, C., Krishnan, S.M., Nung, L.N.: *Mechanical and tribological characterization of diamond-like carbon coatings on orthopedic materials*. Diamond Relat. Mater. 10, 1043-1048 (2001).
83. Robertson, J.: *Ultrathin carbon coatings for magnetic storage technology*. Thin Solid Film 383, 81-88 (2001).
84. Choy K.L.: *Chemical Vapor Deposition of coatings*. Progress in Materials Sciences 48, 57-170 (2003).
85. Richardt, A., Durand, A.-M.: *Les interactions ions énergétiques-solides*. PARIS : INFINE 383. ISBN 2-84046-047-5 (1997).
86. Ledrappier, F.: *Méthodologie d'étude pour optimiser la tenue en fatigue superficielle de dépôts minces*. PhD thesis, École Centrale de Lyon (2005).

87. Grill, A.: *Cold Plasma in Materials Fabrication*. IEEE Press (1993).
88. Andersson, J., Erck, R.A., Erdemir, A.: *Friction of diamond-like carbon films in different atmospheres*. *Wear* 254, 1070-1075 (2003).
89. Robertson, J.: *Ultrathin carbon coatings for magnetic storage technology*. *Thin Solid Film* 383, 81-88 (2001).
90. Kim, Y.T., Cho, S.M., Choi, W.S., Hong, B., Yoon, D.H.: *Dependence of the bonding structure of DLC thin films on the deposition conditions of PECVD method*. *Surf. Coat. Technol.* 169-170, 291-294 (2003).
91. Nouveau, C.: *Étude de revêtements durs (Cr<sub>x</sub>Ny) obtenus par méthodes P.V.D : réalisation et caractérisations. Applications à l'usinage de bois*. Thèse de doctorat n°21-2001, ENSAM de Cluny, pp. 6,40-42, 68-70, 87, 119-122.
92. Tranchant, J.: *Étude de couches minces déposées par pulvérisation magnétron post-ionisée pour l'ingénierie de contraintes*. PhD thesis, École doctorale sciences et technologies de l'information et des matériaux (2007).
93. Aknouche, A.: *Étude de l'usure des outils de coupe traités dans le domaine de l'usinage du bois*. PhD thesis, faculté des sciences de l'ingénieur (2009).
94. Van Der Merwe, J.H., Bauer, E.: *Influence of misfit and bonding on the mode of growth in epitaxy*. *Physical Review B*. 39, 3632 (1989).
95. Andrieu, S., Muller, P.: *Les surfaces solides : conception et méthodes*. EDP Sciences (2005).
96. Movchan, B.A., Demchishin, A.V.: *Fiz. Met. Metalloved.* 28, 653 (1969).
97. Thornton, J.A.: *Ann. Rev. Mater. Sci.*, 7, 239 (1977).
98. Maurin-Perrier, P., Héau, C., Riand, R., Engelric, B.: *Nouvelles voies tribologiques pour l'industrie mécanique*. *Proc. États Généraux de l'Ingénierie des Matériaux*. ATTT Lyon (2004).
99. Pasgrimaud, A., Le strat, F.: *DLC : Lequel choisir pour les applications automobiles*. *Proc. États Généraux de l'Ingénierie des Matériaux*, ATTT Lyon (2004).
100. Roy, S.: *Mesure de l'adhérence et des propriétés mécaniques de couches minces par des essais dérivés de la nanoindentation. Application à la microélectronique et au biomédical*. PhD thesis, École des Mines de Paris (2008).
101. Hamrock, B.J., Dowson, D.: *Isothermal elastohydrodynamic lubrication of point contacts*. *NASA Technical notes D8318*, 1-31 (1976).
102. Ayel, J.: *Lubrification des groups motopropulseurs d'automobile*. SIA, CLESIA (1995).
103. Höhn, B.R., Michaelis, K., Mann, U.: *Film Thickness in Highly Loaded Contacts – Influence of Various Base Oils and VI-Improvers*. *SAE Technical Paper Series No. 961109* (1996).
104. Meunier, C., Mazuyer, D., Vergne, Ph., El Fassi, M., Obiols, J.: *Correlation between the film forming ability and rheological properties of new and aged low sulfated ash, phosphorus and sulfur automotive lubricants*. *Trib. Trans.* 52, 501-510 (2009).

105. Guangteng, G., Spikes, H.A.: *Boundary Film Formation by Lubricant Base Fluids*. Tribol. Trans. 39, 448-454 (1996).
106. Diew, M.: *Contribution à la compréhension des mécanismes d'action des additifs modificateurs de frottement et du couplage additifs/surface dans tous les régimes de lubrification*. PhD thesis, École Centrale de Lyon (2013).
107. Vaglieco, B.M., Beretta, F., D'Alessio, A.: *In situ evaluation of the soot refractive index in the UV-visible from the measurement of the scattering and extinction coefficients in rich flames*. Combust. Flame 79, 259-271 (1990).
108. Mullins, J., Williams, A.: *The optical properties of soot: a comparison between experimental and theoretical values*. Fuel 66, 277-280 (1987).
109. Chauveau, V., Mazuyer, D., Dassenoy, F.: *In Situ Film-Forming and Friction-Reduction Mechanisms for Carbon-Nanotube Dispersions in Lubrication*. Tribol. Lett. 47, 467-480 (2012).





## AUTORISATION DE SOUTENANCE

Vu les dispositions de l'arrêté du 7 août 2006,

Vu la demande du Directeur de Thèse

Monsieur D. MAZUYER

et les rapports de

Monsieur J-L. MANSOT

Professeur - Université des Antilles et de la Guyane - Campus de fouillole - BP 250  
97157 POINTE-A-PITRE - GUADELOUPE

Et de

Monsieur P. MONTMITONNET

Directeur de Recherche CNRS - Mines Paristech - CEMEF - BP 207 - 06904 SOPHIA ANTIPOLIS cedex

**Monsieur ERNESTO André**

est autorisé à soutenir une thèse pour l'obtention du grade de **DOCTEUR**

Ecole doctorale **MECANIQUE , ENERGETIQUE, GENIE CIVIL ET ACOUSTIQUE**

Fait à Ecully, le 20 novembre 2014

P/Le directeur de l'E.C.L.  
La directrice des Etudes







Les enjeux écologiques liés au réchauffement climatique, et plus généralement la lutte contre la pollution, ont occasionné une révolution sans précédent dans le domaine des transports. De nombreuses recherches portant sur l'identification de voies d'amélioration du rendement mécanique des moteurs à combustion interne ont été menées au cours de ces dernières décennies. Dans les moteurs Diesel, le contact Segments-Piston-Chemise (SPC) représente à lui seul près de 40 % des pertes d'énergie par frottement mécanique totales du moteur.

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre général de la lubrification des moteurs Diesel en présence de suies et s'intéresse plus particulièrement au poste SPC pour des contacts Diamond-Like Carbon (DLC) lubrifiés. Ce travail de thèse s'appuie sur des outils de tribométrie originaux pour reproduire les cinématiques particulières des contacts impliqués au niveau de la segmentation. Cette thèse s'attache à identifier l'influence d'un lubrifiant vieilli en fonctionnement sur les mécanismes de lubrification et les mécanismes de frottement associés de couches minces dures de type DLC, en balayant l'ensemble des régimes de lubrification pour des conditions stationnaires et transitoires.

Les revêtements DLC développés dans le cadre de ce travail de thèse ont permis de diminuer significativement le frottement limite en conditions stationnaires et transitoires. La déstructuration du lubrifiant via la formation d'agrégats, générés par le passage des suies, ou par une annulation temporaire de la vitesse d'entraînement représentative des cinématiques de contact observées en zone SPC, sont gouvernés par le triptyque, lubrifiant, surface et cinématique de contact. Enfin, l'analyse de la réponse tribologique de l'interface lubrifiée en conditions stationnaires et transitoires permet à la modélisation théorique du frottement lors d'un cycle complet de glissement à vitesses variables.

**Mots clés:** DLC • Lubrification • Mécanismes de frottement • Processus d'aggrégation • Suies

Ecological issues related to global warming, and more generally the reduction of pollution, have lead to a major revolution in the field of transport. Considerable research work has been carried out during the past decades in order to improve the mechanical efficiency of internal combustion engines. In Diesel engines, almost 40 % of total engine energy losses due to mechanical friction occur in the Piston rings-Piston-Cylinder contact (PPC).

The overall framework of this PhD thesis is Diesel engine lubrication in presence of soot and this work focuses more particularly on Diamond-Like Carbon (DLC) lubricated contacts for PPC region. Unique tribometry tools are used to reproduce the particular contact kinematics involved in the piston assembly. This thesis aims to identify the influence of an aged lubricant on the lubrication and friction mechanisms of DLC hard coatings for all lubrication regimes in steady-state and transient conditions.

DLC coatings developed during this thesis significantly reduce the boundary friction in steady-state and transient conditions. The lubricant destructuring due to aggregate formation, generated by the passage of soot, or by a temporary vanishing of the entrainment speed, are governed by the triplet, lubricant, surface and contact kinematics. Finally, the analysis of the tribological response of the lubricated interface in steady-state and transient conditions leads to the theoretical modeling of the friction during a complete cycle of sliding at variable velocities.

**Key words:** Aggregation process • Diesel soot • DLC • Friction mechanisms • Lubrication